Zeitschrift für angewandte Physik einschließlich Nukleonik

IEUNTER BAND MAI 1957 HEFT 5

Die Bildung von „Selbsttargets" für die Kernreaktion $D(d,n)\,He^3$ und ihr Zusammenhang mit dem Problem der Wasserstoffdiffusion in Metallen

Von Klaus Fiebiger

Mit 15 Textabbildungen

(Eingegangen am 25. Februar 1957)

1. Problemstellung

Unter einem Selbsttarget für die *d,d*-Reaktion soll in Target verstanden werden, welches dadurch enteht, daß von einem Beschleuniger in Metall eingechossene Deuteronen sich in diesem einlagern.

Die Einlagerung des Deuteriums kann nur in berenzter Menge erfolgen, so daß es für die Neutronenusbeute eines Selbsttargets eine Sättigung geben muß. n dieser Arbeit soll die Größe des Sättigungswertes nd der zeitliche Verlauf des Sättigungsvorgangs in bhängigkeit von Metallart und einigen weiteren raktisch auftretenden Parametern (Temperatur, Stromdichte) untersucht werden, um zu einem allgeneinen Verständnis für die Bildung von Selbsttargets u gelangen. Dabei ergeben sich interessante Zusamnenhänge mit dem Problem der Diffusionsgeschwinligkeit von H_2 (D_2) in Metallen.

Die in der Praxis sehr häufige Verwendung von Deuteronen als Geschosse in neutronenerzeugenden Kernreaktionen führt stets zur Bildung von Selbstargets, die sich im allgemeinen als störend erweisen, la sie einen Untergrund von Neutronen der *d,d*-Reiktion liefern. Besonders ins Gewicht fallend ist diese Erscheinung, wenn die beschleunigten Deuteronen nur um kleinen Teil (scharfe Ausblendung des Strahls) oder nur für kurze Zeit (geschwenkter Strahl bei Kurzzeit-Pulsung) zum eigentlichen Versuch benutzt verden und im übrigen auf Blenden fallen. Für ein Selbsttarget geringster Ergiebigkeit, das als Material ür die Herstellung von Blenden verwendet werden cann, besteht daher ein besonderes Interesse.

Andererseits fördern die experimentellen Unbequemlichkeiten, die mit der Verwendung von Schwer-Eis-Targets oder Gastargets für die *d,d*-Reaktion verbunden sind, den Wunsch, *d,d*-Neutronen in vergleichbarer Menge auf bequemere Weise erzeugen zu können. Es soll daher untersucht werden, inwieweit Selbsttargets geeignet sind, Schwer-Eis-Targets zu ersetzen.

2. Versuchsanordnung

a) Beschleuniger mit Auffänger

Für die Versuche wurde der Hechinger Kaskadenbeschleuniger (Maximalspannung 1,5 MV) benutzt. Die Spannungsmeßeinrichtung (Drahtwiderstand von 500 MΩ) wurde mit Hilfe der äußerst genau vermessenen Resonanzen der Reaktionen $Li^7(p,\gamma)$ und $F^{19}(p,\alpha+\gamma)$ geeicht [1].

Das Beschleunigungsrohr wird durch zwei Öldiffusionspumpen von je 1600 Liter/sec Saugleistung auf einen Druck von 10^{-5} Torr evakuiert. Über den Pumpen sitzen wassergekühlte Ölfänger. Trotzdem gelangen von dem Pumpenöl — und auch von den Vakuumdichtungen — noch organische Dämpfe in das Beschleunigungsrohr. Die damit verbundene Verunreinigung des Targets mit Kohlenstoff ist mitentscheidend für die Beschleunigungsspannung, die für die Versuche gewählt wurde.

Die Kernreaktion

$$C^{12} + d \rightarrow N^{13} + n - 0{,}281\ \text{MeV}$$

hat nämlich im Laborsystem die Schwellenenergie 0,328 MeV. Die entstehenden monoenergetischen Neutronen sind sehr viel langsamer als die von der *d,d*-Reaktion herrührenden Neutronen. Da die meisten Meßmethoden für Neutronen jedoch nur mittelbar energieabhängig sind (Neutronen verschiedener Energie sind meßtechnisch nicht einfach zu trennen), wird die Untersuchung durch den Neutronenuntergrund der Reaktion $C^{12}(d,n)\,N^{13}$ sehr erschwert. Man wählt deshalb vorteilhafterweise eine unter dem Schwellenwert liegende Deuteronenenergie. Die meisten Untersuchungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV vorgenommen.

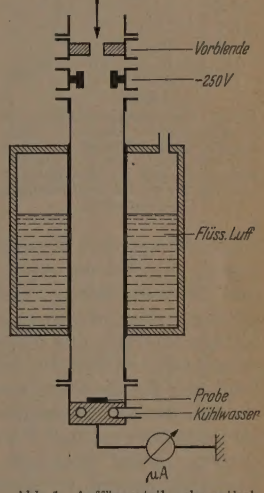


Abb. 1. Auffängerteil, schematisch

Den Aufbau des Auffängerteiles zeigt Abb. 1. Die Probe wird an den Boden eines wassergekühlten Auffängers gepreßt, der einen Faraday-Käfig darstellt und die Messung des in ihn einfallenden Teilchenstromes gestattet. Entstehende Sekundärelektronen werden durch eine Gegenspannung von 250 V im Käfig zurückgehalten.

Falls keine besonderen Maßnahmen ergriffen werden, schlagen sich die organischen Dämpfe auf dem Target nieder und werden durch den auftreffenden Teilchenstrahl eingebrannt, so daß die Probe schon nach kurzer Zeit mit einer Kohleschicht bedeckt ist. Wegen der geringen Reichweite der Deuteronen, die bei $E_D = 300$ keV in den verschiedenen Metallen nur

einige μ beträgt, darf kein Kohlebelag $>0{,}01\ \mu$ Dicke auftreten, wenn die Sättigung reiner Proben mit Deuterium untersucht werden soll. Eine Schicht von etwa 100 Atomlagen $\approx 10^{-6}$ cm gibt schon einen sichtbaren Belag und ermöglicht die visuelle Überprüfung. Es zeigt sich, daß eine Kühlung des Auffängerrohres mit flüssiger Luft unmittelbar oberhalb der Probe (Abb. 1) den Kohlenniederschlag in ausreichender Weise verhindert. Bei allen Untersuchungen wurde diese Kühlung daher vorgenommen.

Eine Vorblende definiert den Strahlenquerschnitt. Er wurde zu 12 mm Durchmesser gewählt. Ein Zentrierteil ermöglicht die Ausrichtung, so daß die Probe zentral vom Strahl getroffen wird.

Zur Bestimmung der Probentemperatur dient ein Thermoelement, dessen Zuleitungen durch den Boden des Auffängers hindurchgeführt sind. Die Schweißverbindung des Thermoelementes wird durch eine Keramikperle mit Hilfe einer Schraube auf die Probe gedrückt, so daß sie unmittelbar neben dem auftreffenden Deuteronenstrahl von 12 mm Durchmesser liegt.

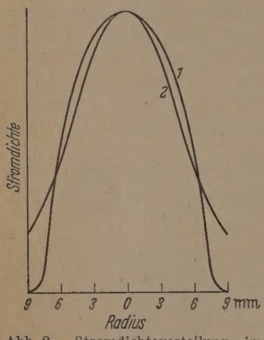


Abb. 2. Stromdichteverteilung im Deuteronenstrahl. Kurve 1: Autoradiographische Messung mit einer Vorblende mit 12 mm ⌀. Kurve 2: Differenzmessung der Neutronenausbeute durch Vorblenden verschiedenen Durchmessers

Es ist möglich, die Probe auf einer kleinen, aus Ergan hergestellten Heizplatte auf hohe Temperaturen (bis 800° C) zu bringen oder auch die wärmeisolierte Probe mit Hilfe des auftreffenden Deuteronenstrahls zu heizen.

Notwendig für die vorliegenden Untersuchungen ist die Kenntnis der Stromdichteverteilung, wie später gezeigt wird. Sie wurde experimentell bestimmt, und zwar zunächst über die Ausbeute einer neutronenerzeugenden Kernreaktion bei sukzessiver Verengung des Strahls mittels verschiedener Vorblenden und Differenzbildung, außerdem mittels Autoradiographie. Dazu wurde eine Graphitscheibe mit Deuteronen bestrahlt und der bei der Reaktion $C(d, n)$ N^{13} entstehende radioaktive Stickstoff mit $T_{\frac{1}{2}} = 10$ min als Indikator für die Stromverteilung benutzt. Im linearen Teil der Schwärzungskurve kann die Schwärzung als unmittelbares Maß für die Stromdichte angesehen werden. Beide Methoden zeigen eine befriedigende Übereinstimmung, vor allem im Hinblick auf die relativ ungenaue Neutronenmessung (Abb. 2).

b) Detektoren und Elektronik, Eichung

Zum Nachweis der Neutronen werden BF_3-Zählrohre und Hornyak-Scintillatoren benutzt. Ein BF_3-Zählrohr in der Anordnung als „Long Counter" [2] besitzt leider den Nachteil, daß er wegen seiner Größe nur in einer „schlechten Geometrie" verwendet werden kann, d.h. wegen der Größe seines empfindlichen Volumens und der Notwendigkeit, für definierte Zählverhältnisse einen Abstand Quelle—Long Counter von mindestens 30 cm einzuhalten, werden die von den Blenden im Auffängerrohr herrührenden Störneutronen mit nahezu gleicher Wahrscheinlichkeit gezählt wie die vom Target kommenden. Es ist daher erforderlich, den Störuntergrund bei jeder Messung zu bestimmen.

Der Vorteil eines Long Counters ist seine zeitliche Konstanz, die mit einer 10 mg Ra + Be-Neutronenquelle in Standardstellung laufend überprüft wurde. Die Schwankungen waren stets kleiner als 1%. Zu den eigentlichen Messungen wurde ebenfalls eine stets gleichbleibende Anordnung benutzt.

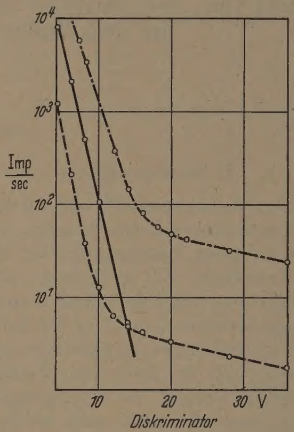


Abb. 3. Zählimpulse eines Hornyak-Scintillators in Abhängigkeit von der Diskriminatorspannung. ——— 3,5 mg Ra; – – – – 0,9 mg Ra + Be; · — · — · 10 mg Ra + Be

Der nach den Angaben von HORNYAK [3] selbst angefertigte Scintillator in Verbindung mit einem Vervielfacher RCA 5819 erlaubt eine „gute Geometrie", d.h., der von der Quelle (dem Target) durch den Detektor erfaßte Raumwinkel beträgt nahezu 2, ist dagegen

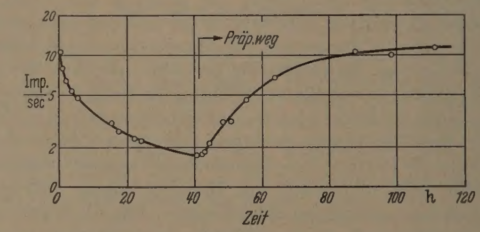


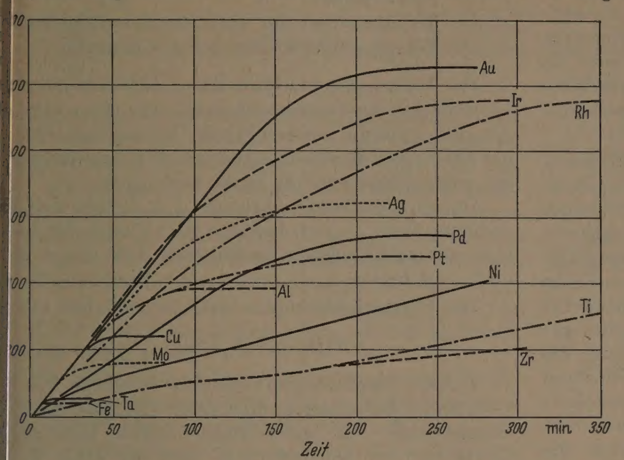
Abb. 4. Änderung der Empfindlichkeit eines Hornyak-Scintillators mit einem Vervielfacher RCA 5819 bei einer Gleichstrombelastung von 3,4 μA

für Störquellen mindestens um einen Faktor 10^3 kleiner. Der γ-Untergrund kann leicht unterdrückt werden.

Proportionalität zwischen Teilchenzahl und Anzeige ist nur gegeben, wenn der Anodenstrom des Vervielfachers $<0{,}2\ \mu$A bleibt. So führt beispielsweise eine Gleichstrombelastung von 3,4 μA, die also weit unter der zulässigen Belastung von 750 μA bleibt, zu einer Verminderung der Empfindlichkeit in Funktion der Bestrahlungsdauer, wie sie in Abb. 4 wiedergegeben ist. Der Vorgang ist reversibel.

Die von Neutronen und γ-Quanten im Scintillator hervorgerufene Lumineszenz löst Elektronen an der Photokathode aus (zu denen noch thermisch emittierte hinzutreten). Die Größe des Photostromes läßt sich natürlich durch Diskrimination nicht ändern. Um den Anodenstrom kleiner als 0,2 μA zu machen, kann man entweder den Scintillator abschirmen oder den

bstand Quelle—Detektor vergrößern. Eine Bleiabhirmung hat den Vorteil gegenüber der Abstandsrgrößerung, daß sie das Zählverhältnis von Neutro-



bb. 5. Sättigungskurven für verschiedene Metalle mit $E_D = 300$ keV, $I_D = 50\,\mu$A, Strahldurchmesser 12 mm, Hornyak-Scintillator

en und γ-Quanten zugunsten der Neutronen verchiebt. Die für die vorliegende Untersuchung verendete Bleiabschirmung von 2,5 cm Dicke ergab für ine Ra + Be-Quelle eine Verschiebung etwa um den aktor 5 zugunsten der Neutronen.

Der Hornyak-Zähler wurde stets in gleicher Eintellung benutzt und vor und nach jeder Messung in tandardstellung mit der 10 mg Ra + Be-Neutronenuelle geeicht. Die Schwankungen blieben $< 2\%$.

Die übrige verwendete Elektronik (Hochspanungsgeräte, Verstärker, Untersetzer, Integratoren) st konventionell.

c) Proben

Für die Untersuchungen wurden Proben aus technisch reinen Metallen verwendet, jeweils Scheiben von 20 mm Durchmesser und etwa 1 mm Dicke. Bei einigen Metallen wurden außerdem auf Cu aufgedampfte bzw. galvanisierte Schichten benutzt.

Die Oberflächen wurden sorgfältig gereinigt. Da sie aber nach der Reinigung noch einige Zeit an Luft verblieben, hatten sie Gelegenheit zu oxydieren. Es handelt sich also in jedem Fall um technische Oberflächen, die auch für den praktischen Zweck interessieren.

3. Sättigungskurven

Da bisher in der Literatur Angaben über Selbsttargets fehlen, wurde, um einen Überblick über die auftretenden Effekte zu gewinnen und eventuelle Korrelationen der Meßergebnisse mit irgendwelchen Metalleigenschaften zu erkennen, für eine große Anzahl von Metallen der Verlauf des Sättigens unter gleichen Bedingungen aufgenommen. Die Kurven sind in Abb. 5 wiedergegeben für $E_D = 300$ keV, $I_D = 50\,\mu$A und 12 mm Strahldurchmesser.

Die Größe des Sättigungswertes für die verschiedenen Metalle schwankt um den Faktor 25. Die Ausbeute des gesättigten Gold-Targets ist etwa 50% der Ausbeute eines Schwer-Eis-Targets. Unter der Annahme, daß das Deuterium in dem vom Deuteronenstrahl durchsetzten Volumen homogen verteilt ist und daß Kernstöße an Sauerstoff, Deuterium und Gold etwa gleich wahrscheinlich sind, ergibt sich daraus ein Atomverhältnis Goldatom : Deuteron $\approx 1:1$. Eine einfache Rechnung über die Zahl der bis zum Erreichen der Sättigung in Gold eingeschossenen Deuteronen gibt die gleiche Größenordnung.

Eisen und Tantal zeigen den niedrigsten Sättigungswert von allen untersuchten Metallen.

Im allgemeinen besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Sättigungswert S und Zeitdauer t_S bis zum Erreichen der Sättigung; allerdings weicht der Verlauf des Sättigens bei Ti, Ni, Zr und etwas weniger bei Pd und bei Rh von dieser Regel ab. Der Kurvenverlauf bei Titan und andeutungsweise auch bei Nickel zeigt sogar einen Wendepunkt.

Eine kurze Unterbrechung der Bestrahlung im Verlauf des Sättigens ändert den bis dahin erreichten Zustand kaum; die Ausbeute ist beim Wiederbeginn der Bestrahlung annähernd die gleiche. Bei Gold z.B. kann die Unterbrechung wochenlang dauern und die Probe im Hochvakuum oder in Luft verbleiben; der einmal erreichte Zustand erscheint eingefroren.

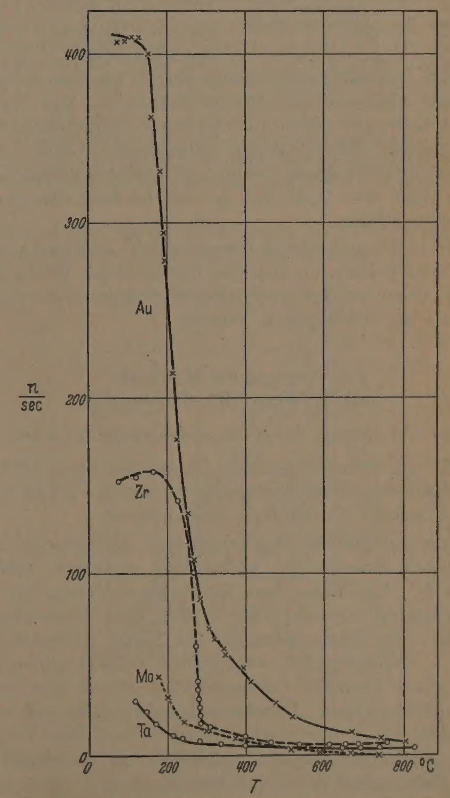


Abb. 6. Temperaturabhängigkeit der Neutronenausbeute gesättigter Proben

Für einige Metalle wurde die Abhängigkeit des Sättigungswertes von der Temperatur der Probe gemessen (Abb. 6).

Die bei 50° C gesättigte Probe wurde stufenweise um etwa je 10° C erwärmt und die Messung vorgenommen, wenn ein konstanter Wert der Ausbeute erreicht war. Allgemein wird ein Abnehmen des Sättigungswertes beobachtet; teilweise erfolgt die Abnahme nahezu sprunghaft. Bei etwa 800° C nähert sich die Ausbeute bei allen Proben nahezu dem gleichen Wert von etwa 0,001 der Ausbeute eines Schwer-Eis-Targets.

Um zu sehen, ob bei der sprunghaften Aufheizung einer gesättigten Probe andere Bedingungen gelten, als wenn die unbestrahlte Probe bei einer bestimmten Temperatur gesättigt wird, wurden eine Reihe von Ta-Proben zunächst aufgeheizt und dann gesättigt. Abb. 7 zeigt die nach den beiden Verfahren erhaltenen Ausbeutekurven. Der Kurvencharakter stimmt überein, die Differenz der Absolutwerte zeigt, daß beim stufenweisen Aufheizen der gesättigten Probe das Gleichgewicht noch nicht vollständig erreicht war, als die Messung vorgenommen wurde.

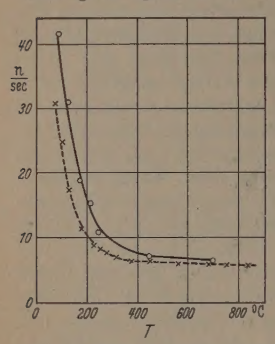


Abb. 7. Temperaturabhängigkeit der Neutronenausbeute für Tantal. ——— Aufheizen einer gesättigten Probe; – – – – Sättigung nach Aufheizen der unbestrahlten Probe

Ein besonderes Verhalten wurde bei Chrom festgestellt. Eine dicke Chromschicht ($d < 5\,\mu$) wurde galvanisch auf einer Cu-Unterlage aufgebracht [4]. Die frische Schicht zeigte silbergrauen Glanz. Der Sättigungswert dieser Probe liegt noch etwa 20% über dem Wert von Gold und ist der höchste überhaupt gemessene Wert.

Wird die silbergraue Chormschicht nach dem Verchromen poliert, so daß sie metallischen Hochglanz zeigt, dann ist der Sättigungswert nur noch $^1/_5$ des Wertes der silbergrauen Schicht.

4. Deutung der Meßwerte mit Hilfe der Diffusionstheorie

a) Berechnung der vorliegenden speziellen Fälle

Es soll versucht werden, die beobachteten Effekte mit Hilfe der Diffusionstheorie zu deuten. Dabei wird von folgender Vorstellung ausgegangen.

Die ins Metall eingeschossenen Deuteronen einheitlicher Energie E_D haben eine definierte Reichweite R. Am Ende ihrer Reichweite bleiben sie im Metallgitter stecken und bilden eine flächenhafte Quelle von Deuteronen, die ins Gitter diffundieren. Im — experimentell weitgehend verwirklichten — Fall einer unendlich ausgedehnten Platte und eines unendlich breiten Deuteronenstrahls läßt sich das Problem eindimensional behandeln und die Verteilung $\varrho(x, t)$ des Deuteriums im Metall als Funktion der Tiefe x und der Zeit t berechnen.

Experimentell bestimmt wird die Neutronenausbeute $A(R, t)$, die mit der Dichte ϱ verknüpft ist, durch die Gleichung

$$A(R, t) = c\,I \int_0^R \varrho_R(x, t)\,\sigma(x)\,dx. \qquad (1)$$

Dabei ist:

c = Konstante, die die spezielle Meßanordnung berücksichtigt,
I = Teilchenstrom der auftreffenden Deuteronen,
$\sigma(x)$ = Wirkungsquerschnitt der d,d-Reaktion.

Der Wirkungsquerschnitt der d,d-Reaktion σ liegt als Funktion der Deuteronenenergie vor [6]; $\sigma = \sigma(E)$. Aus der — für die meisten Metalle bekannten — Energie-Reichweite-Beziehung läßt sich $E(x)$ ermitteln und für jeden Parameter E_0 dann auch $\sigma(x)$.

Die zu erwartende Ausbeute $A(R, t)$ läßt sich berechnen, wenn $\varrho_R(x, t)$ bekannt ist. Umgekehrt kann man mit experimentell bestimmten $A(R, t) \equiv A(E, t)$ auch $\varrho(x)$ finden.

Der Sättigungswert $S = S(R)$ ist definiert als

$$S(R) = A(R, t = \infty).$$

1. Fall. Flächenhafte konstante Quelle in $x = R$.

Für die Berechnung interessiert zunächst der eindimensionale Fall einer flächenhaften konstanten Quelle mit der Quellstärke Q' und der Dicke $d\lambda$ in einer Platte mit der Dicke $L = 2R$. Als Randbedingungen sollen gelten:

$$\varrho = 0 \quad \text{für} \quad x = \begin{matrix} 0 \\ L \end{matrix} \text{ für alle } t.$$

Diese idealisierten Randbedingungen entsprechen insofern nicht exakt den vorliegenden Verhältnissen, als $\varrho(x)$ größer 0 für $x = 0$ und $x = L$. Sie müssen umgeändert werden nach der Vorstellung, daß die Umgebung der Platte die austretenden Deuteronen nicht reflektiert und daher als vollkommener Absorber angesehen werden kann [5].

Die Transporttheorie liefert als geeignete Grenzbedingung für die Lösung, die die wirkliche Dichte $\varrho(0)$ bzw. $\varrho(L)$ möglichst genau wiedergibt, die Dichte $\varrho = 0$ in einem Abstand d von der Oberfläche der Platte mit

$$d = 2{,}13\,\frac{\alpha}{v}$$

(α = Diffusionskoeffizient, v = Geschwindigkeit der Deuteriumatome).

Eine — später folgende — Abschätzung zeigt, daß die Korrektur für die vorliegende Arbeit ohne Einfluß ist.

Als Anfangsbedingungen sollen gelten:

$$\varrho = 0 \quad \text{für} \quad x = 0.$$

Die Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial \varrho^*}{\partial t} = \alpha\,\Delta\,\varrho^*. \qquad (2)$$

(ϱ^* hat die Dimension: Teilchen/cm³) mit dem konstanten Diffusionskoeffizienten $\alpha = \alpha(T)$ [T = Temperatur] hat bekannte allgemeine Lösungen für den eindimensionalen Fall.

$$\varrho(x, t) = \int_0^\infty [B(\gamma)\cos\gamma x + C(\gamma)\sin\gamma x]\,e^{-\alpha\gamma^2 t}\,d\gamma \qquad (3)$$

bzw.

$$\varrho(x, t) = \sum_{m=1}^\infty (B_m \cos\gamma_m x + C_m \sin\gamma_m x)\,e^{-\alpha\gamma_m^2 t}. \qquad (3')$$

Dimension von ϱ: Teilchen/cm.

Die Lösung für den vorliegenden Fall lautet:

$$\left.\begin{aligned} &x, t) = \frac{2Q'L}{\alpha\pi^2} \\ &\sum_{m=1}^{\infty}\left[(1 - e^{-m^2\pi^2\alpha t/L^2})\,\frac{\sin m\pi x/L}{m^2}\cdot\sin\frac{m\pi}{2}\right]. \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

Bei den vorliegenden Untersuchungen ist die Dicke ɪr Probe $L \gg 2R$, so daß man dafür eine andere athematische Darstellung erwarten sollte. Es hat ch jedoch gezeigt, daß der Diffusionskoeffizient $= \alpha(T)$ in dem von den Deuteronen durchschossenen ereich $0 \leq x \leq R$ um mehrere Zehnerpotenzen höher ɜgt als im Bereich $x > R$ und praktisch an der Stelle $= R$ eine undurchlässige Wand angenommen werden ɪrf. Die obengenannte Randbedingung $\varrho = 0$ für $= L = 2R$ wird durch Spiegelung an der undurchssigen Wand erfüllt.

Die Berechtigung für die eindimensionale Rechɪng wird daraus hergeleitet, daß die Ausdehnung des ɜnutzten Deuteronenstrahls in y- und z-Richtung mit 2000 μ groß ist gegen R (etwa 3 μ bei $E_D = 300$ keV). ie Stromdichte des auffallenden Strahls nimmt vom trahlzentrum nach außen hin ab, entsprechend einer bnahme von Q' nach außen (Abb. 2). Auch hier ann die Annahme gemacht werden, daß in Bereichen, eren Größe mit $x = R$ vergleichbar ist, der Gradient on ϱ in der y,z-Richtung vernachlässigbar klein ist.

Die einzige Unbekannte der Gl. (4) ist der Diffuonskoeffizient α, über den in der Literatur im allgeɪeinen keine genauen Angaben zu finden sind.

Mit den Abkürzungen

$$\eta = \alpha t,$$

$$c = \frac{2}{\pi^2}\,Q'$$

nd mit

$$L = 1$$

ird Gl. (4)

$$\left.\begin{aligned} \varrho(x, t) &= \frac{c}{\alpha}\sum_{m=1}^{\infty}\left[(1 - e^{-m^2\pi^2\eta})\,\frac{\sin m\pi x}{m^2}\,\sin\frac{m\pi}{2}\right] \\ &= \frac{c}{\alpha}\sum_m\left[(1 - e^{-m^2\pi^2\eta})\cdot F(x, m)\right]. \end{aligned}\right\} \quad (4')$$

'olgende Fälle sind zu unterscheiden:

a) Stationärer Fall, $\eta = \infty$.

1. Für $\alpha \to \infty$ wird $\varrho \to 0$;

ie Deuteronen strömen ungehindert durchs Metall.

2. $t \to \infty$, Fall der Sättigung;

ann ist

$$\varrho(x, t = \infty) = \varrho_S(x) = \frac{c}{\alpha}\sum_m\left(\frac{\sin m\pi x}{m^2}\,\sin\frac{m\pi}{2}\right)$$

$$= \frac{c}{\alpha}\,F_S(x).$$

Vegen $\sin m/2 = 0$ für $m = 2n$ ($n = 1, 2, 3, \ldots$) enthält $F(x, m)$ nur die Glieder mit ungeradem m. $F(x, m)$ und lamit auch $\varrho_S(x)$ ist daher symmetrisch zu $x = 0{,}5$, vie zu erwarten.

Die numerischen Werte der Funktion $F_S(x)$ sind n Tabelle 1 aufgeführt (die graphische Darstellung ist nitenthalten in Abb. 8; $\eta = \infty$).

Tabelle 1

Funktion $\sum_m\left(\frac{\sin m\pi x}{m^2}\sin\frac{m\pi}{2}\right) = F_S(x)$

(gerechnet bis Summe $m = 11$, Fehler $< 1\%$)

x	$F_S(x)$	x	$F_S(x)$
0,05	0,120	0,30	0,745
0,10	0,249	0,35	0,858
0,15	0,372	0,40	0,984
0,20	0,489	0,45	1,125
0,25	0,618	0,50	1,192

Die Materialeigenschaften der Platte gehen nur insofern in die Funktion $\varrho_S(x)$ ein, als

$$\varrho_S(x) \sim \frac{1}{\alpha}. \quad (5)$$

b) Nichtstationärer Fall.

$$\varrho(x, t) = \frac{c}{\alpha}\sum_m\left[(1 - e^{-m^2\pi^2\eta})\cdot F(x, m)\right]. \quad (4')$$

Tabelle 2

Funktion $\sum_m\left[(1 - e^{-m^2\pi^2\eta})\right]\cdot F(x, m)$, gerechnet bis $m = 11$

η \ x	0,05	0,10	0,15	0,20	0,25	0,30	0,35	0,40	0,45	0,50
0,10	0	0,002	0,004	0,010	0,016	0,030	0,046	0,098	0,188	0,239
0,25	0,004	0,018	0,035	0,052	0,075	0,119	0,175	0,253	0,345	0,402
0,50	0,026	0,058	0,098	0,144	0,201	0,255	0,335	0,423	0,524	0,584
0,75	0,046	0,103	0,160	0,221	0,284	0,363	0,450	0,551	0,658	0,720
1,00	0,063	0,135	0,202	0,277	0,357	0,448	0,545	0,651	0,761	0,824
1,50	0,085	0,180	0,269	0,368	0,460	0,565	0,676	0,788	0,904	0,969
2,00	0,099	0,207	0,296	0,419	0,522	0,636	0,751	0,871	0,991	1,057
3,00	0,112	0,233	0,345	0,470	0,582	0,705	0,833	0,953	1,076	1,142
∞	0,120	0,249	0,372	0,489	0,618	0,745	0,858	0,985	1,125	1,192

Tabelle 2 zeigt numerische Werte für ϱ mit η als Parameter und Abb. 8 die graphische Darstellung.

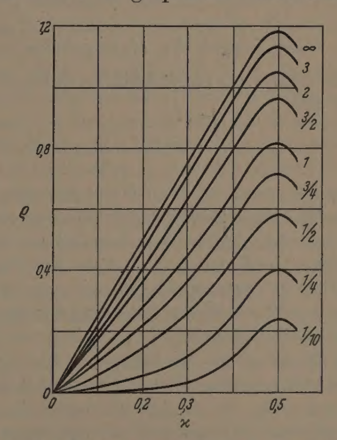


Abb. 8. $\varrho(x, t)$ als Funktion von x für $L = 1$. Parameter ist $\eta = \alpha t$

Nach den experimentellen Ergebnissen sollte eine Beziehung bestehen zwischen dem Diffusionskoeffizienten α und der Zeit t_a, die erforderlich ist, um einen bestimmten Prozentsatz a der Sättigung zu erreichen.

Es ist

$$A(R, t) = \int_0^R \sigma(x)\,\varrho(x, \eta)\,dx = \Phi(\eta).$$

Φ ist eine nicht explizit bekannte Funktion von η. Für $t=\infty$ ist

$$A(R,\infty)=\int_0^R \sigma(x)\,\varrho(x,\infty)\,dx=\Phi(\infty).$$

Die Ausbeuten für $t=\infty$ und t = endlich unterscheiden sich im ortsabhängigen Teil der Gl. (4), wie auch aus Abb. 8 hervorgeht (keine affine Kurven). Bei Sättigung bis zu einem bestimmten Prozentsatz a ist

$$\Phi(\eta)=a\Phi(\infty).$$

Da in $\Phi(\eta)$ nur η vorkommt und die Funktion (siehe Abb. 8) überall eindeutig definiert ist, kann man nach η auflösen und erhält

$$\eta=\alpha\,t_a=\Phi^{-1}[\Phi(\infty)\cdot a]$$

und hieraus

$$t_a\sim\frac{1}{\alpha}. \tag{6}$$

2. Fall. Vorgegebene Verteilung $\varrho=f(x)$.

Wie später gezeigt wird, interessiert noch die Lösung der Diffusionsgleichung für die Platte mit der Dicke L und den Randbedingungen

$$\varrho=0 \quad \text{für} \quad x=\frac{L}{0} \text{ für alle } t$$

und der Anfangsbedingung

$$\varrho=f(x) \quad \text{für} \quad t=0; \qquad f(0)=f(L)=0.$$

Für eine beliebige Zeit t lautet die Lösung:

$$\left.\begin{aligned}\varrho(x,t)=\frac{2}{L}\sum_{m=1}^{\infty}\Bigg[&\exp\frac{-m^2\pi^2\alpha\,t}{L^2}\times\\ &\times\sin\frac{m\pi x}{L}\int_0^L f(\lambda)\sin\frac{m\pi\lambda}{L}\,d\lambda\Bigg].\end{aligned}\right\} \tag{7}$$

b) Vergleich mit den Meßergebnissen

Wenn die Sättigung tatsächlich nach Gl. (5) und (6) erfolgt, gilt also

$$\varrho_S\sim\frac{1}{\alpha};\qquad t_a\sim\frac{1}{\alpha}.$$

Die Beziehungen lassen sich an Hand der Abb. 5 nachprüfen. Der Quotient des Sättigungswertes S und der Zeit t, die zum Erreichen eines bestimmten Prozentsatzes des Sättigungswertes (hier z.B. 50%) nötig ist, muß dann für alle Metalle konstant sein, da $S=A$ $(t=\infty)\sim\varrho$ für $E_D=\text{const}$. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 wiedergegeben.

Bei den Metallen Fe, Ta, Mo, Cu, Al, Ag, Ir, Au ist die Übereinstimmung vorhanden, wobei der Wert von Fe unsicher ist, da es sich um einen Quotienten kleiner Zahlen handelt, die aus der graphischen Darstellung nicht sehr genau entnommen werden können.

Pt zeigt eine merkliche Abweichung; die Anfangstangente der Sättigungskurve hat jedoch die gleiche Neigung wie die der vorher genannten Metalle.

Rh und noch mehr Pd sättigen sich wesentlich langsamer. Von Pd ist ein anormales Verhalten gegenüber Wasserstoff bekannt. Beide Metalle haben ein kubisch flächenzentriertes Gitter und treten nur in einer Modifikation auf.

Tabelle 3

Metall	$t_{0,50}$ (min)	S (n/sec)	$S/t_{0,50}$
Fe	3,5	45	12,8
Ta	4	50	12,5
Mo	13	160	12,3
Cu	20	240	12,0
Al	31	380	12,2
Ag	54	645	12,0
Ir	74	960	12,9
Au	84	1060	12,5
Pt	36	480	13,3
Rh	106	960	9,1
Pd	80	545	6,8
Ni			
Ti			
Zr			

Der Sättigungsverlauf von Ti, Zr und Ni zeigt einen völlig anderen Charakter als der der übrigen Metalle. Bei Ti tritt ein Wendepunkt auf, die Kurve wird konkav nach oben gekrümmt. Die drei Metalle treten in verschiedenen Modifikationen auf, Ti und Zr mit kubisch raumzentriertem Gitter und als hexagonal dichteste Kugelpackung, Ni mit kubisch raumzentriertem und kubisch flächenzentriertem Gitter.

Wie in einer Arbeit von Ham und Bennett [8] gezeigt wird, ist die Änderung des Gittertyps mit einer Änderung der Diffusionsgeschwindigkeit des Wasserstoffs verbunden. Die Messung der Diffusionsgeschwindigkeit stellt sogar eine empfindliche und genaue Methode dar, um die Lage der Umwandlungspunkte bei allotropen Umwandlungen zu bestimmen.

Es liegt die Vermutung nahe, daß der anormale Sättigungsverlauf z.B. bei Ti durch eine allmähliche Umwandlung des Metallgitters hervorgerufen wird. Der Gittertyp der Niedertemperaturform von Ti ist die hexagonal dichteste Packung; der Umwandlungspunkt liegt bei 864° C. Für kleine Gitterbereiche wird diese Temperatur möglicherweise beim Abbremsen der eingeschossenen Deuteronen kurzzeitig erreicht. Eine Bestätigung der Vorstellung ist nur durch eine eingehende metallphysikalische Untersuchung möglich.

5. Nachprüfung der Theorie an Gold

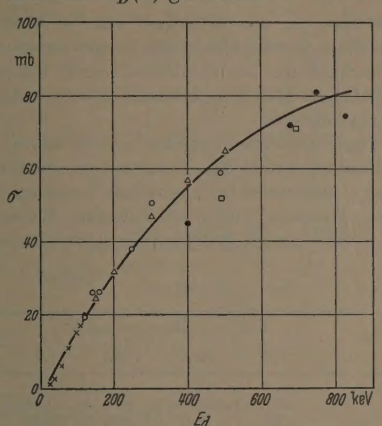
a) Allgemeines

Wegen der Abhängigkeit der Bremsung der Deuteronen von der Metallart ist es notwendig, für weitere Untersuchungen sich auf ein bestimmtes Metall festzulegen, um numerische Rechnungen durchführen zu können.

Die außerdem erforderliche Kenntnis des Verlaufs von $\sigma_{d,d}$ kann Abb. 9 entnommen werden, der die Messungen verschiedener Autoren [6] zugrunde liegen. Die Werte der ausgezogenen Linie wurden für die Rechnung benutzt.

Aus verschiedenen Gründen wurden die folgenden Untersuchungen an Gold ausgeführt. Es besitzt einen hohen Sättigungswert, sein Bremsvermögen für Deuteronen ist gemessen, und wegen seiner chemischen Stabilität läßt es sich bequem handhaben. Der wichtigste Grund ist jedoch, daß für Gold näherungsweise angenommen werden darf, daß die Diffusionsgeschwindigkeit des Deuteriums bei 20° C gleich Null ist. [Die Löslichkeit von Gasen in Metallen ist proportional α (Jost [7]) und für Wasserstoff in Gold wird sie gleich Null angegeben.]

In Abb. 10 ist die Reichweite von Deuteronen in [Gold] in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie dar[ge]stellt, wie sie von H. A. WILCOK gemessen wurde [8]. [D]araus läßt sich $E_D(x)$ gewinnen.



[A]bb. 9. Wirkungsquerschnitt der Reaktion $D(d, n)$ He^3. Nach Messungen [vo]n [6]: × ARNOLD; ○ MCNEILL, KEYSER; △ WENZEL; □ HUNTER; ● CHAGNON

b) Berechnung von $A(R, t)$

Zur Darstellung des Sättigungsverlaufes wurde

$$A(R, t) = c\,I \int_0^R \sigma(x)\, \varrho_R(x, t)\, dx$$

[f]ür Gold nach den in Tabelle 2 wiedergegebenen Wer[t]en berechnet. Dabei wurde die Annahme gemacht, [d]aß in dem betroffenen Bereich der Probe eine ein[h]eitliche Temperatur herrscht d.h., daß α konstant [i]st. Das Ergebnis ist in Abb. 11 dargestellt.

c) Vergleich mit der Erfahrung

Die theoretische Kurve stimmt für kleine Werte [v]on η nicht mit den experimentell bestimmten Kurven [ü]berein. Ihr Anstieg aus dem Ursprung erfolgt zwar mit $\operatorname{tg}\vartheta > 0$, ist aber am Beginn konkav nach oben gekrümmt.

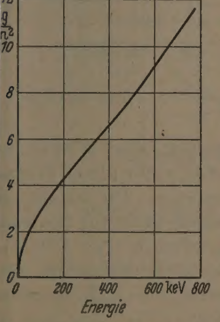


Abb. 10. Reichweite von Deuteronen in Gold in Abhängigkeit von E_D (H. A. WILCOK [8])

Eine — später noch angegebene — Auswertung der experimentellen Ergebnisse liefert bei den für die Rechnung von Abb. 11 zugrunde gelegten Annahmen $\alpha_{Au} = 4{,}7 \cdot 10^{-12}\ \mathrm{cm^2/sec}$. Die auf S. 216 angeführte Korrektur für die Randbedingungen wird selbst bei einem $v = 10^6$ cm/sec kleiner als $10^{-2}\,\mu$ und bringt praktisch keine Änderung, so daß sie zur Erklärung der Abweichung nicht herangezogen werden kann.

Desgleichen kann auch eine anfängliche Anlagerung von D_2 an die Oberfläche der Probe nicht zur Erklärung dienen. Ein solcher Effekt sollte davon abhängen, wie lange die Probe vor Beginn der Bestrahlung im Auffänger liegt, da im ganzen Beschleunigungsrohr Deuterium an den Wänden okkludiert ist und sich im Austausch auch an der Probe anlagern müßte. Die zeitliche Abhängigkeit konnte experimentell nicht gefunden werden.

Die Abweichung der experimentellen Kurve an ihrem Anfang von der theoretisch zu erwartenden kann in folgendem begründet sein. Bei Beginn der Bestrahlung verschlechtert sich das Vakuum im Beschleunigungsrohr durch Ausgasen der vom Teilchenstrahl getroffenen Metallteile. Dies führt zu einer erhöhten Streuung im Rohr. Bei gleichem Teilchenstrom in den Faraday-Käfig des Auffängers, der konstant gehalten

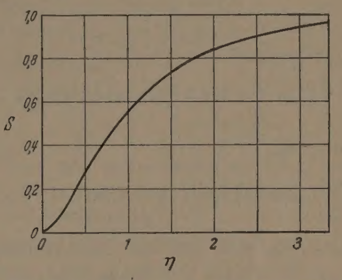


Abb. 11. Theoretische Kurve für den Sättigungsverlauf an Gold $E_D = 300$ keV

wird, fällt zunächst ein höherer Strom auf die Blenden und erhöht den Störuntergrund. Die Ermittlung und Berücksichtigung des Störuntergrundes erfolgt jedoch nur durch Subtraktion des Wertes, bei dem die Kurve bei $t = 0$ einsetzt, da sie streng linear ansteigt. Eine Messung der Störneutronen direkt an der Vorblende stützt die Annahme, daß ein bei Bestrahlungsbeginn hoher und erst im Verlauf von etwa 10 min auf einen konstanten Wert abnehmender Störuntergrund von Neutronen die Differenz zwischen experimenteller und theoretischer Kurve verschuldet.

d) Temperaturabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten α

Eine Temperatur für die Probe während der Bestrahlung läßt sich z.B. mit einem Thermoelement ermitteln.

Es ist nicht zu erwarten, daß die so gemessene Temperatur die für die Diffusion gültige ist. Beim Abbremsen der Deuteronen wird durch Anregungs- oder Ionisierungsakte eine Energie von der Größenordnung 10 eV je Gitteratom längs eines Kanals auf der Teilchenbahn abgegeben, die 10^5 °K im thermischen Gleichgewicht entspräche. Bei der Abgabe der Energie an das Metallgitter wird ein gewisser Bereich in der Umgebung des Kanals kurzzeitig auf hohe Temperatur gebracht und gestattet das Hindurchtreten von Wasserstoff. Quantitative Angaben über diesen Mechanismus sind in der Literatur nicht zu finden.

Es ist nicht sinnvoll, $\alpha = \alpha(T)$ zu bestimmen, solange nicht angegeben werden kann, für welche Temperatur α gelten soll.

Der geschilderte Mechanismus bedingt eine Abhängigkeit des Sättigungsverlaufes und -wertes von der Ionisierungsdichte, die durch die auftreffenden Deuteronen hervorgebracht wird und ermöglicht so die Nachprüfung. In erster Näherung (Annahme gleicher Ionisierung über den ganzen Weg des Deuterons) kann die Nachprüfung durch Variation der Stromdichte erfolgen. In dieser Näherung ist auch die Annahme, daß α im betroffenen Bereich der Probe konstant ist, enthalten.

Die experimentelle Prüfung, wieweit $\alpha(T)$ von der Ionisierungsdichte abhängt, kann nur davon ausgehen, welcher Sättigungswert sich bei einer bestimmten Bestrahlungs-Stromstärke einstellt. Die Neigung der Sättigungskurve am Ursprung ist, wie aus Abb. 5 hervorgeht, nicht von α abhängig. Die Diffusionsgleichung liefert das gleiche Ergebnis. ϱ läßt sich darstellen:

$$\left.\begin{aligned} \varrho(x,t) &= \frac{c}{\alpha} \sum_{m=1}^{\infty} (1 - e^{-b(m)\alpha t})\, F(x,m) \\ \frac{\partial \varrho}{\partial t} &= \sum_m \frac{c}{\alpha}\, b(m)\, \alpha\, F(x,m)\, e^{-b(m)\alpha t} \\ \frac{\partial \varrho}{\partial t} &= \sum_m c\, b(m)\, F(x,m)\, e^{-b(m)\alpha t}. \end{aligned}\right\} \qquad (4'')$$

Für kleine αt ist

$$\frac{\partial \varrho}{\partial t} \approx \sum_m c\, b(m)\, F(x,m)\, [1 - b(m)\, \alpha t]; \qquad \alpha t \ll 1.$$

Der Variationsbereich für die Bestrahlungs-Stromstärke, der praktisch zur Verfügung steht, ist allerdings sehr klein, da für kleine Ströme von einigen $\mu A/cm^2$ zum Erreichen der Sättigung schon mehrere Tage Bestrahlungsdauer notwendig sind und bei hohen Strömen ($>50\ \mu A/cm^2$) die produzierte Wärme nicht mehr schnell genug abgeführt werden kann. Der Nachweis der Erhöhung von α bei Erhöhung der Ionisierungsdichte konnte daher nur qualitativ geführt werden.

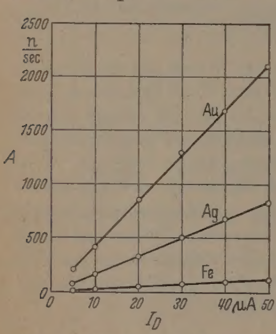


Abb. 12. Abhängigkeit der Neutronenausbeute A von der Stromstärke I_D bei gesättigter Probe

An einer gesättigten Probe kann man die Abhängigkeit der Ausbeute von der Stromstärke des auftreffenden Deuteronenstroms untersuchen. Sie ist streng linear (Abb. 12), solange mit den verschiedenen Stromstärken nur kurze Zeit bestrahlt wird.

Setzt man nach Erreichen der Sättigung mit I_1 die Bestrahlung mit einer anderen Stromstärke I_2 fort, dann nimmt der auf gleiche Stromstärke normierte Sättigungswert langsam ab für $I_2 > I_1$ und langsam zu für $I_2 < I_1$. Die Änderung liegt außerhalb des Bereichs, der gegeben ist durch die gleichzeitige Änderung der „makroskopischen“ Temperatur und wird auf eine Erhöhung bzw. Erniedrigung der effektiven Temperatur für die Diffusion zurückgeführt.

e) Direkte Bestimmung von $\varrho(x)$

Die Neutronenausbeute ist

$$A'(E_D, t) = A(R, t) = c I \int_0^{x=R} \varrho_R(x,t)\, \sigma(x)\, dx. \qquad (1)$$

Der Zusammenhang zwischen der Deuteronenenergie E_D und der Reichweite R ist für Gold in der Abb. 10 wiedergegeben.

Es soll R variiert werden, aber so, daß die Verteilung $\varrho(x, t)$, die sich bei einer Reichweite R_0 eingestellt hat, unverändert bleibt.

Durch Differentiation ergibt sich

$$\frac{\partial A}{\partial R} = c I\, \varrho_{R_0}(R, t)\, \sigma(R). \qquad (7)$$

Das Produkt $\varrho\sigma$ als Funktion von R bzw. x für $t = \text{const}$ kann durch Differentiation gewonnen werden, wenn die Ausbeute als Funktion von R bekannt ist. Durch Division mit dem bekannten $\sigma(x)$ erhält man dann $\varrho_{R_0}(x)$ direkt.

Die experimentelle Aufgabe besteht darin, $A(R, t)$ zu bestimmen, wobei die Konstante c, die die Meßanordnung berücksichtigt, wirklich konstant bleiben muß. Die Messung wurde auf folgende Weise durchgeführt. Bei einer Beschleunigungsspannung von

Tabelle 4

Zeit [min]	Beschleunigungsspannung [kV]					
	300	400	500	600	700	800
100	110	235	380	570	770	1000
200	220	440	750	1100	1520	1970
300	340	610	1040	1550	2100	2780
400	400	740	1260	1870	2500	3370
500	420	815	1400	2055	2800	3760
560	420	830	1430	2100	2840	3800

800 kV wurde eine Goldprobe mit $I_D = 35\ \mu A$ bestrahlt. Nach jeweils 30 min wurde kurzfristig die Ausbeute mit Beschleunigungsspannungen von 300, 400, 500, 600 und 700 kV gemessen ($I_D = \text{const}$) und dann die Bestrahlung bei 800 kV fortgesetzt bis zum Erreichen der Sättigung. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 wiedergegeben. Abb. 13 zeigt die Kurvenschar mit der Deuteronenenergie E_D als Parameter.

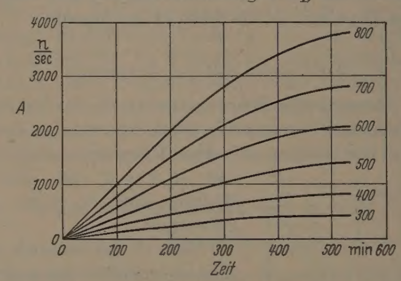


Abb. 13. Sättigungskurven für Gold $I_D = 35\ \mu A$, E_D als Parameter

Wegen der Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes $\sigma = \sigma(E) = \sigma(x)$ ist $\varrho(x)$ für kleine Werte von x entscheidend für die Ausbeute. Die Funktion $A = A(E, t)$ für kleine E ist deshalb auch nur für sehr kleine t verschieden von A bei großem E (vgl. Abb. 8). Bei $t = 100$ min ist die Differenz noch erkennbar, für $t > 100$ min verlaufen die Kurven $A = A(E, t)$ affin für alle E.

Ein Vergleich der Ausbeutekurve $A = f(E)$ bei Sättigung für die so bestrahlte Goldprobe mit der Ausbeute eines dicken Schwer-Eis-Targets (Abb. 14), normiert auf gleiches A für $E_D = 300$ keV, zeigt qualitativ beim Goldtarget ein schnelleres Anwachsen von $\varrho(x)$ [bzw. $\varrho(E)$] mit zunehmendem x. Der Maßstab von x ist in dieser Abbildung nicht linear.

Die Differentiation selbst ist wegen der geringen Krümmung der Kurve $A = f(x)$ ungenau, wie die vergleichsweise durchgeführte Zeichnung für die Aus-

...utekurve des D_2O-Targets ergeben hat. Die gewonnene Dichteverteilung $\varrho(x)$ ist ebenfalls in Abb. 14 dargestellt nach den Zahlenwerten der Tabelle 5.

Über die Verteilung $x > R$ läßt sich mit dem angeführten Versuch keine Aussage machen. Zum Nach-

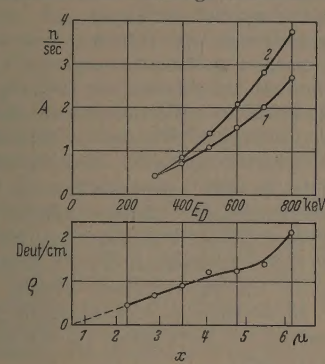


Abb. 14. Ausbeute eines Goldtargets (Kurve 2) und vergleichsweise eines dicken Schwer-Eis-Targets (Kurve 1), normiert für $E_D = 300$ keV, als Funktion der Energie. Dichteverteilung des Deuteriums als Funktion von x. Ordinatenmaßstäbe in willkürlichen Einheiten

weis der erwarteten steilen Flanke am Ende der Reichweite wurde eine mit $E_D = 400$ keV gesättigte Goldprobe, von der die Kurven $A = A(I_D)$ mit I_D zwischen

Tabelle 5

E_D [keV]	200	300	400	500	600	700	800
σ_ϱ (relativ)	55	120	210	310	350	425	680
σ [mb]	30	44	56	65	71	76	80
ϱ (relativ)	1,8	2,7	3,7	4,8	4,9	5,6	8,5

1 und 50 μA und $A = A(E_D)$ mit E_D zwischen 300 und 1000 keV bei 1 μA Strahlstrom nachgeprüft waren, mit $E_D = 800$ keV und $I_D = 10$ μA bestrahlt. Die Ausbeute $A(t)$ ist in Abb. 15 wiedergegeben.

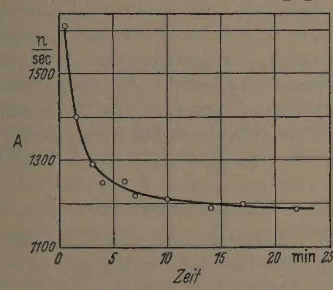


Abb. 15. Ausbeute $A(t)$ für eine gesättigte Probe bei Erhöhen von $E_D = 400$ keV auf $E_D = 800$ keV; $I_D = 10$ μA

Der steile Abfall von A wird folgendermaßen gedeutet. Bei Bestrahlung mit $E_D = 400$ keV hat die Verteilung $\varrho_S(x)$ einen steilen Abfall für $x > R_{400}$, da in diesem Bereich $\alpha = \alpha(T)$ praktisch gleich Null ist (kein „Aufheizen“ durch Ionisierung). Wird E_D auf 800 keV erhöht mit $R_{800} \approx 2 R_{400}$, dann wird α endlich für $x < R_{800}$; die Diffusion kann auch in dem Raum $R_{400} < x < R_{800}$ erfolgen, und die steile Flanke flacht sich nach $x > R_{400}$ ab. In erster Näherung bleibt für den Beobachtungszeitraum die Gesamtmenge des Deuteriums im Gold gleich, so daß die Verschiebung der Verteilung nach $x > R_{400}$ mit entsprechend kleinem $\sigma(x)$ eine Abnahme der Ausbeute verursacht.

Erst nach sehr langer Zeit ($t > 120$ min bei diesem Versuch) beginnt $A(t)$ wieder etwas anzusteigen. Die Auffüllung des Volumens mit Deuterium im Bereich $x \underset{(<)}{=} R_{800}$ geht wegen des sehr kleinen σ in die Ausbeute nur unwesentlich ein.

f) Berechnung von α

Die experimentelle Bestimmung von α ist möglich aus der Zeit t_a, zum Erreichen des Prozentsatzes a der Sättigung S notwendig ist.

Es ist

$$a\,F_S(x) = \sum_m \left(1 - e^{-m^2\pi^2\alpha t_a/L^2}\right) F(x, m). \tag{8}$$

Für jedes m gilt

$$a_m = 1 - e^{-m^2\pi^2\alpha\, t_a/L^2}.$$

Rechnet man mit einem festen m, kann man nach α auflösen. Der Fehler der Abschätzung für $m = 1$ ist von der Größenordnung 15%.

Die experimentellen Daten sind (aus Abb. 5):

$$a = 0{,}5,$$

$$L = 2R = 5{,}8 \cdot 10^{-4}\ \text{cm},$$

$$t_a = 83\ \text{min} = 5 \cdot 10^3\ \text{sec}.$$

Damit ergibt sich

$$\alpha = 4{,}7 \cdot 10^{-12}\ \text{cm}^2/\text{sec}.$$

Mit diesem so errechneten Wert von α läßt sich $\varrho_S(x)$ ermitteln. Es sind

$$Q' = 3 \cdot 10^{14}\ \text{Teilchen/sec},$$

$$L = 2R = 5{,}8 \cdot 10^{-4}\ \text{cm},$$

$$\alpha = 4{,}7 \cdot 10^{-12}\ \text{cm}^2/\text{sec}.$$

Wegen der Voraussetzung, daß bei $L/2$ eine undurchlässige Wand sitzt, muß mit dem Faktor 2 multipliziert werden. Damit ergibt sich

$$\varrho_S(x) = 1{,}5 \cdot 10^{22} \cdot F_S(x)\ \text{Teilchen/cm}.$$

$F_S(x)$ hat für den Bereich $0 < x < L/2$ und Summe $m = 1$ bis $m = 11$ den mittleren Wert 0,62. Damit

$$\varrho_S(x) = 9{,}2 \cdot 10^{21}\ \text{Teilchen/cm}$$

ist die „lineare Dichte“; die wirkliche Dichte erhält man durch Multiplikation mit der Fläche F. Die Zahlenwerte sind gleich. Im Volumen von 1 cm^3 befinden sich demnach $9{,}2 \cdot 10^{21}$ Teilchen und im Volumen $2{,}9 \cdot 10^{-4}$ cm^3

$$2{,}7 \cdot 10^{18}\ \text{Teilchen}.$$

Zum Erreichen der Sättigung wurden 50 μA Deuteronen 240 min lang auf 1 cm^2 Fläche aufgeschossen, entsprechend

$$4{,}2 \cdot 10^{18}\ \text{Deuteronen}.$$

Die Übereinstimmung ist befriedigend; ein Teil der eingeschossenen Deuteronen läuft ja aus der Platte heraus, ehe Sättigung erreicht ist.

6. Metallphysikalische Anwendungsmöglichkeiten

Zur Bestimmung des Diffusionskoeffizienten α für Wasserstoff in Metallen gibt es eine Reihe von erprobten Verfahren (siehe z. B. [7]). Die Erfahrung hat gezeigt, daß ein Experiment dann zu gut auswertbaren

Ergebnissen führt, wenn zwischen der charakteristischen Länge x (z.B. Dicke der Membran, durch die der Wasserstoff diffundiert) in cm, der Versuchsdauer t in sec und dem Diffusionskoeffizienten α die Beziehung besteht:

$$\frac{x}{\alpha t} \approx 1 .$$

Welche Größenordnung von Diffusionskoeffizienten meßbar ist, läßt sich an folgendem Beispiel abschätzen. Mit

$$x = 1\,\mu = 10^{-4}\,\text{cm} \quad \text{und} \quad t = 10\,\text{Tge} = 10^6\,\text{sec}$$

wird

$$\alpha = 10^{-8} \cdot 10^{-6} = 10^{-14}\,\text{cm}^2/\text{sec}.$$

Extrem dünne Schichten und lange Zeiten ermöglichen noch die Bestimmung von Diffusionskoeffizienten der Größenordnung 10^{-17} cm²/sec. Verschiedene Methoden mit radioaktiven Isotopen (ZIMEN [10]) können noch empfindlicher sein, sind für die Messung der Diffusion von Wasserstoff jedoch nicht geeignet. Über die Verwendung von Tritium zu diesem Zweck wurde bislang nichts bekannt.

Alle bisher zur Messung der Diffusionsgeschwindigkeit von Wasserstoff in Metallen angewendeten Verfahren ergeben nicht die reine Diffusion, sondern sind stets mit einer Phasengrenzreaktion verknüpft. Für die technische Durchführung des Experimentes kommt erschwerend hinzu, daß die Oberfläche nur mit außerordentlichem Aufwand als „physikalische" Oberfläche ausgebildet werden kann und bei extrem dünnen Schichten die Metallstruktur nicht regelmäßig ist.

Die vorstehend geschilderte Methode der α-Bestimmung mit Hilfe der d,d-Reaktion umgeht die Phasengrenzreaktion vollständig und kann eine Reihe bisher für die Messung nicht zugänglicher Metalle erfassen. In dem beschossenen Volumen der Probe können natürlich Veränderungen im Metallgitter auftreten, die zunächst nicht eliminierbar sind. Es genügt aber, wenn die Probe eine bekannte Verteilung des Deuteriums $\varrho = f(x)$ [s. Gl. (7)] erhält. Dann läßt sich die Diffusion in den Raum $x > R$ rechnerisch erfassen und auch experimentell auf folgende Weise bestimmen.

Bestrahlt wird eine Folie des zu untersuchenden Metalls mit der Dicke $2R$. Durch geeignete Kühlung wird sichergestellt, daß in den Raum $x > R$ kein Deuterium hineindiffundiert. Nach Erreichen der Sättigung mit $\varrho = f(x)$ wird die Folie umgedreht und auf die Versuchstemperatur gebracht. Die sich einstellende Verteilung des Deuteriums wird von Zeit zu Zeit mit einem als Sonde verwendeten Deuteronenstrahl abgetastet. Auf diese Weise läßt sich zwar kein besonders kleines α messen; das Wesentliche dieses Verfahrens ist die Vermeidung der Phasengrenzreaktion.

Wenn aber ermittelt werden kann, bis zu welchem Grad die direkte in Abschnitt 5e bereits beschriebene Methode zuverlässig und hinsichtlich der Temperatur für die Diffusion definiert ist, kann man damit extrem kleine α bestimmen. Die Phasengrenzreaktion ist auf jeden Fall vermieden.

Besteht die Möglichkeit, statt Deuteronen Tritonen als Geschosse zu verwenden, dann kann das Verfahren mit dem Umwenden der bestrahlten Folie ohne eine Sonde verwendet werden. Die Nachweisempfindlichkeit für herausdiffundierte Tritiumatome ist außerordentlich groß. Es wird ohne Schwierigkeiten möglich sein, Diffusionskoeffizienten 10^{-25} cm²/sec zu messen. Die Phasengrenzreaktion tritt dabei natürlich wieder auf. Mit der Sondenmethode kann bei den einzelnen Metallen entschieden werden, ob sie das Meßergebnis für α wesentlich verfälscht.

Um Aussagen über die Diffusion von normalem Wasserstoff machen zu können, muß das Verhältnis α_H/α_D bekannt sein, gegebenenfalls auch α_H/α_T. An Pd wurden wiederholt Bestimmungen von α_H/α_D durchgeführt. JOST und WIDMANN [11] fanden bei 95% D ein Verhältnis $\alpha_H/\alpha_D = 1{,}31$ statt dem erwarteten $\sqrt{2} = 1{,}41$. In einer Arbeit von FARKAS [12] wird ein temperaturabhängiger Quotient gefunden.

Bei über einen großen Temperaturbereich bekanntem $\alpha = \alpha(T)$ liefert die Methode der d,d-Reaktion eine Möglichkeit, die für die Diffusion effektiv geltende Temperatur zu bestimmen und Aussagen über die Energieverteilung im Metallgitter bei einem Ionisierungsakt zu machen.

Eine Reihe von offenen Fragen kann nur durch Strukturuntersuchungen behandelt werden. In Zusammenarbeit mit dem Röntgeninstitut der TH Stuttgart (Prof. Dr. R. GLOCKER) wurde zunächst versucht, zu entscheiden, ob die Einlagerung von Deuterium ins Metallgitter in solch großen Mengen zu einer Veränderung der Gitterkonstanten führt. Experimentelle Schwierigkeiten haben bislang eine eindeutige Entscheidung verhindert. Goldproben, die genügend feinkristallin und spannungsfrei sind, konnten noch nicht hergestellt werden. Mit Hilfe der Neutronenbeugung wird eine Untersuchung der Deuteriumeinlagerung möglich sein.

Besondere Untersuchungen sind erforderlich, um die Vermutung zu stützen, daß die Erklärung für den anormalen Verlauf der Sättigungskurven von Ti, Ni und Zr in der Entstehung lokaler allotroper Umwandlungen zu suchen ist.

Für das Verhalten von Chrom steht eine Erklärung aus. Da Chrom in drei Modifikatonen auftritt, kann sie ebenfalls hierin vermutet werden, falls nicht auch die Oberflächenbeschaffenheit, die nicht näher untersucht wurde und die für eine unbehandelte galvanische und eine polierte Schicht sicher sehr verschieden ist, die unterschiedlichen Meßergebnisse herbeiführt.

Zusammenfassung

Es wurde — zunächst experimentell — die Bildung von Selbsttargets für die Reaktion $D\,(d, n)$ He³ an einer großen Anzahl von Metallen untersucht. Bei Targettemperaturen zwischen 20 und 50° C wurden Neutronenausbeuten von 0,02 (Fe) bis 0,5 (Au) der Ausbeute eines Schwer-Eis-Targets gemessen. Die Ausbeute nimmt allgemein mit steigender Temperatur des Targets ab, teilweise sprunghaft. Bei 800° C beträgt die Ausbeute etwa 0,001; die Unterschiede in der Ausbeute zwischen den verschiedenen Metallen sind nahezu verschwunden.

Zur Vermeidung der Selbsttarget-Bildung ist die Verwendung von Fe und Ta als Material und, soweit möglich, die Aufheizung der betroffenen Flächen zweckmäßig.

Mit Deuterium gesättigtes Gold bietet sich als Ersatz für ein Schwer-Eis-Target an. Bei jeder Änderung der Bestrahlungsbedingungen (Teilchenenergie,

tromdichte, Gesamtstrom) verändert sich der Sät-gungswert; seine Einstellung erfordert längere Zeit. n Fällen, in denen keine Neutronenquelle konstanter ntensität gefordert ist, bietet es wegen seiner beque-ıen Handhabung Vorteile gegenüber einem Schwer-is-Target. Eine einmal gesättigte Goldprobe bleibt ei Lagerung auch über Wochen praktisch unverändert.

Es wird gezeigt, daß zur Deutung der Selbsttarget-Bildung die Diffusionstheorie im Rahmen der Meß-enauigkeit ausreicht. Der Diffusionskoeffizient α ür Deuterium in den verschiedenen Metallen ist die naßgebende Größe. Eine Berechnung von α ist mög-ich aus den gemessenen Sättigungskurven, wobei llerdings keine dafür geltende Temperatur angegeben verden kann. Es gilt eine effektive Temperatur für lie Diffusion, die höher liegt als die mit dem Thermo-Element gemessene, und die auf lokale kurzzeitige „Gitteraufheizung" bei der Abbremsung der Deutero-ıen im Metallgitter zurückgeführt wird.

Es besteht die Möglichkeit, durch Sättigen eines Metallvolumens mit Deuterium eine bekannte Ver-eilung des Deuteriums $\varrho(x)$ herzustellen, die als Anfangsbedingung $\varrho = f(x)$ für $t = 0$ die Berechnung ler weiteren Diffusion gestattet. Die experimentelle Bestimmung des Diffusionskoeffizienten α wird da-durch möglich, ohne daß eine Phasengrenzreaktion in den Versuch eingeht.

Die Arbeit wirft einige metallphysikalische Fragen auf, deren Lösung Strukturuntersuchungen notwendig macht.

Herrn Professor Dr. E. SCHOPPER bin ich für die Möglichkeit, diese Arbeit im Hochspannungslaboratorium Hechingen durchzuführen und für die Förderung und Unterstützung zu großem Dank verpflichtet.

Ebenso danke ich Herrn Professor Dr. R. GLOCKER für seine Unterstützung und Herrn Dr. E. MACHERAUCH für die Durchführung von Strukturuntersuchungen im Röntgeninstitut der Technischen Hochschule Stuttgart.

Ein Teil der Apparaturen entstammt Mitteln des Schwerpunktprogramms.

Literatur: [1] LANDOLT-BÖRNSTEIN, 6. Aufl., Bd. I, Teil 5, S. 309. — [2] HANSON, A.O., and J.L. MCKIBBEN: Phys. Rev. **72**, 673 (1947). — [3] HORNYAK, W.F.: Rev. Sci. Instrum. **23**, 264 (1952). — [4] D'ANS, J., u. E. LAX: Taschenbuch für Chemiker und Physiker, 2. Aufl., S. 1597. — [5] SOODAK, H., and E. C. CAMPBELL: Elementary Pile Theory, S. 27ff. — [6] ARNOLD, W.R. u. a.: Phys. Rev. **93**, 483 (1954). — MCNEILL, K.G., and G.M. KEYSER: Phys. Rev. **81**, 602 (1951). — WENZEL, W.A., and WARD WHALING: Phys. Rev. **88**, 1149 (1952). — HUNTER, G.T., and H.T. RICHARDS: Phys. Rev. **76**, 1445 (1949). — CHAGNON, P.R., and G.E. OWEN: Phys. Rev. **101**, 1798 (1956). — [7] JOST, W.: Diffusion in solids, liquids, gases. Academic Press 1952. — [8] WILCOK, H.A.: Phys. Rev. **74**, 1752 (1948). — [9] HAM, W.R., and F.O. BENNETT: Phys. Rev. **59**, 939 (1941). — [10] ZIMEN, K.E.: Transactions of Chalmers University, Gothenburg, Sweden, Nr. 175, S. 176. 1956. — [11] JOST, W., u. A. WIDMANN: Z. phys. Chem. B **29**, 247 (1935); B **45**, 285 (1940). — [12] FARKAS: Trans. Faraday Soc. **32**, 1667 (1936).

KLAUS FIEBIGER,
Institut für Kernphysik
der Universität, Frankfurt a.M.

Die positive Niederdrucksäule im homogenen magnetischen Querfeld*

Von MAX DANDERS

Mit 11 Textabbildungen

(Eingegangen am 12. Dezember 1956)

Die Beeinflussung einer positiven Niederdrucksäule durch ein magnetisches Querfeld ist ein bekanntes technisches Problem der Quecksilberdampf-Stromrichter. Schon sehr schwache magnetische Streufelder können eine starke Abdrängung des Entladungsstromes zur Gefäßwand verursachen und zu einseitiger Stromaufnahme der Anoden führen. Dadurch wird die Betriebssicherheit der Stromrichtergefäße vermindert und ihr Spannungsabfall erhöht. Um diese Einflüsse quantitativ zu kennen, ergab sich die Frage nach der Theorie der Einwirkungen eines homogenen magnetischen Querfeldes auf die zylindrische homogene positive Säule einer Niederdruckentladung und deren Überprüfung durch das Experiment.

Theorie

Die Ladungsträgerverteilung

Zur Berechnung der Bewegung von Elektronen in einem Plasma unter der Einwirkung elektromagnetischer Felder und Dichtegradienten wurde die Lorentz-Methode [1], [2], [3] nach TONKS und ALLIS [4] angewandt. Danach sind die Elektronengeschwindigkeiten in den drei Koordinatenrichtungen, wenn die y-Achse in Richtung zur Anode mit der Entladungs achse zusammenfällt und das homogene magnetische Feld H parallel zur z-Achse gerichtet ist:

$$\left.\begin{aligned}\bar{\dot{x}} &= D_e\cdot\alpha\,[e E_x/kT_e - \partial(\ln n_e)/\partial x] + D_e\,\beta\, e\, E_y/kT_e\\ \bar{\dot{y}} &= D_e\cdot\alpha\,[e E_y/kT_e] - D_e\cdot\beta[e E_x/kT_e - \partial(\ln n_e)/\partial x]\\ \bar{\dot{z}} &= D_e\,[e E_z/kT_e - \partial(\ln n_e)/\partial z].\end{aligned}\right\}\quad(1)$$

Die Faktoren α und β wurden von TONKS und ALLIS [4] berechnet.

$$\left.\begin{aligned}\alpha &= 1 - h_e^2 + h_e^4\, e^{h_e^2}\int_{h_e^2}^{\infty} e^{-x}/x\,dx\\ \beta &= (\sqrt{\pi}/2)\,h_e\left|1 - 2h_e^2 + 4h_e^3\, e^{h^2}\int_{h_e}^{\infty} e^{-x^2}\,dx\right|.\end{aligned}\right\}\quad(2)$$

Verwendet man für die Beweglichkeit der Elektronen die Langevinsche Gleichung, so ist für

$$h_e = e\,\lambda_e\,\mu_0\,H/m_e\,v_w = \sqrt{3/2}\,(1/\alpha_e)\,b_e\,\mu_0\,H \quad (3)$$

($\alpha_e = 0{,}75$) einzusetzen. Nach [5] und [6] wird in Gl. (1) vereinfachend geschrieben:

$$\left.\begin{aligned}D_e\cdot\alpha &= f_\alpha\, D_e/(1+h_e^2) = D_{He}\, f_\alpha\\ D_e\cdot\beta &= h_e\, f_\beta\, D_e/(1+h_e^2) = D_{He}\, h_e\, f_\beta.\end{aligned}\right\}\quad(4)$$

* Gekürzte Dissertation der TH München.

Die Faktoren f_α und f_β sind Funktionen von h_e. Innerhalb des Bereiches $0 \leq h_e \leq \infty$ ändern sich die Werte dieser Funktionen nur wenig $1{,}0 \leq f_\alpha \leq 2{,}0$ und $0{,}85 \leq f_\beta \leq 1{,}33$. Die für Elektronen geltenden Gln. (1) werden auch für die Ionen des Plasmas angewandt, wobei jedoch die Faktoren f_α und f_β gleich 1 gesetzt werden. Entsprechend der Gl. (3) gilt für Ionen:

$$h_i = \sqrt{3/2}\,(1/\alpha_i)\, b_i \mu_0 H \quad \text{mit} \quad \alpha_i = 1{,}15. \tag{5}$$

Unter Verwendung der Townsendschen Beziehung:

$$\left.\begin{aligned} &D_e e/kT_e = D_e/U_e = b_e \quad \text{und} \quad D_i e/kT_i = D_i/U_i = b_i\\ &\text{und}\\ &\qquad b_{He} = D_{He}/U_e; \quad b_{Hi} = D_{Hi}/U_i \end{aligned}\right\} \tag{6}$$

wird mit der ersten und dritten Gleichung der Gl. (1) der Schottkysche Ansatz für die Wandströmung einer Diffusionssäule [7] erweitert. Die Strömungsdichten der Elektronen und Ionen in der x-Richtung sind:

$$\left.\begin{aligned} n_i \bar{\dot{x}}_i &= s_{ix} = -D_{Hi}\,\partial n_i/\partial x + b_{Hi} n_i E_x + h_i b_{Hi} E_y n_i\\ n_e \bar{\dot{x}}_e &= s_{ex} = -f_\alpha D_{He}\,\partial n_e/\partial x - f_\alpha \cdot b_{He} n_e E_x +\\ &\qquad + f_\beta h_e b_{He} E_y n_e, \end{aligned}\right\} \tag{7}$$

auf Grund der ambipolaren Diffusion gilt:

$$\left.\begin{aligned} &s_{ix} = s_{ex} = -D_{AH}\,\partial n_e/\partial x +\\ &\qquad + (f_\beta \alpha_i/f_\alpha \alpha_e)\, E_y n_e h_i b_e D_{AH}/D_a\\ &\text{mit}\\ &D_{AH} = f_\alpha \frac{D_{He} b_{Hi} + D_{Hi} b_{He}}{f_\alpha b_{He} + b_{Hi}} \quad \text{und} \quad D_a = \frac{D_e b_i + D_i b_e}{b_e + b_i}. \end{aligned}\right\} \tag{8}$$

Zusammen mit der ambipolaren Wandströmung in der z-Richtung, die durch das Magnetfeld nicht beeinflußt wird,

$$s_{iz} = s_{ez} = -D_a\,\partial n_e/\partial z \tag{9}$$

ergibt sich auf Grund der Kontinuitätsgleichung die Differentialgleichung der Ladungsträgerverteilung über den Querschnitt der zylindrischen positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld:

$$\left.\begin{aligned} &\partial^2 n_e/\partial x^2 + (D_a/D_{AH})\,\partial^2 n_e/\partial z^2 - (f_\beta \alpha_i/f_\alpha \alpha_e)\times\\ &\qquad \times h_i b_e E_y/D_a (\partial n_e/\partial x) + n_e/\tau D_{AH} = 0. \end{aligned}\right\} \tag{10}$$

In Gl. (10) ist $1/\tau$ die Anzahl der im Mittel in der Zeiteinheit von einem Elektron neu erzeugten Elektronen und Ionen. Dieser Ansatz bedeutet eine Vernachlässigung der Stufenionisierung über den sehr bedeutenden metastabilen Anregungszustand der Gasatome. SPENKE [8] hat jedoch gezeigt, daß selbst bei der Annahme reiner Stufenionisierung sich die Trägerverteilung über den Querschnitt einer positiven Säule nur unwesentlich gegenüber der Annahme reiner Einfachionisierung ändert. Dieses Ergebnis wird hier übernommen, da bei der späteren Berechnung der Elektronentemperatur und des Längsgradienten die Stufenionisation berücksichtigt wird. Mit der üblichen Vernachlässigung von b_i gegen b_e und der Annahme, daß $h_i^2 \ll 1$ folgt aus Gl. (8)

$$D_{AH}/D_a = 1/[1 + b_i(1 + h_e^2)/b_e f_\alpha]. \tag{11}$$

Dieser Ausdruck wird mit der Beschränkung auf schwache magnetische Felder gleich 1 gesetzt, so daß

$$D_{AH} \approx D_a \tag{12}$$

angenommen werden kann. Diese Beschränkung ist ohnehin notwendig, da eine über den Entladungsquerschnitt konstante Elektronentemperatur vorausgesetzt wurde, was nur bei schwachen magnetischen Feldern zulässig ist.

Mit dieser vereinfachenden Annahme kann die Differentialgleichung (10) geschrieben werden:

$$\left.\begin{aligned} &\partial^2 n_e/\partial x^2 + \partial^2 n_e/\partial z^2 - a\,\partial n_e/\partial x + b \cdot n_e = 0\\ &\text{mit}\\ &\quad a = (f_\beta \alpha_i/f_\alpha \alpha_e)\, h_i b_e E_y/D_a; \quad b = 1/\tau D_a. \end{aligned}\right\} \tag{13}$$

Nach einer unveröffentlichten Arbeit von W. SCHMEIDLER ist die Lösung der Differentialgleichung (13) und damit die Trägerverteilung über den Querschnitt der positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld:

$$n_e = A\, e^{a x/2} J_0\left(\sqrt{b - a^2/4} \cdot r\right). \tag{14}$$

Als Grenzbedingung wird, da Messungen immer eine endliche Trägerdichte in unmittelbarer Wandnähe ergeben, für $n_e = 0$ ein fiktiver Radius $\varrho \cdot R$ eingeführt, wobei $\varrho \geq 1$ ist. Somit gilt:

$$\sqrt{b - a^2/4}\; \varrho \cdot R = \lambda_1. \tag{15}$$

Die Gl. (14) läßt erkennen, daß das Maximum des Funktionsverlaufes in dem Bereich $0 \leq r \leq R$ auf der x-Achse liegen muß. Ist x^* der Ort maximaler Trägerdichte, so ergibt sich die Integrationskonstante zu:

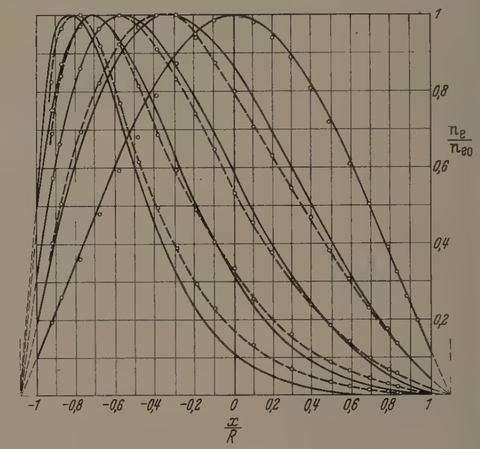


Abb. 1. Vergleich des berechneten (———) und gemessenen (o—o) relativen Verlaufs der Ladungsträgerdichte n_e/n_{e0} über den Querschnitt der positiven Säule bei $H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10 [Oe]. $I_A = 20$ A; $T_G = 40°$C; $p = 5{,}33 \cdot 10^{-3}$ Torr

$$A = \frac{n_{e0}\, e^{-a x^*/2}}{J_0(\lambda_1 x^*/R)} = n_{e0} A^* \tag{16}$$

und die relative Trägerdichteverteilung über den Entladungsquerschnitt ist:

$$n_e/n_{e0} = e^{(x - x^*) a/2}\, \frac{J_0(\lambda_1 r/\varrho R)}{J_0(\lambda_1 x^*/\varrho R)}. \tag{17}$$

Zur Veranschaulichung des Funktionsverlaufes sei auf die Abb. 1 und 2 verwiesen.

Der Ort maximaler Trägerdichte x^* ist gegeben durch:

$$\frac{J_0(\lambda_1 x^*/\varrho R)}{J_1(\lambda_1 x^*/\varrho R)} = 2\lambda_1/\varrho \cdot R \cdot a. \tag{18}$$

Die Gl. (18) gibt ein interessantes Verhalten der Entladungssäule wieder. Die relative Maximaverschiebung $x^*/\varrho \cdot R$ ist eine Funktion von $R \cdot a$, d.h. die

magnetische Beeinflussung wächst in ihrer Auswirkung, der seitlichen Trägerabdrängung, mit dem Radius R der positiven Säule.

Zur Berechnung des Wandkorrekturfaktors ϱ wird die Trägerströmung zur Wand betrachtet.

Mit $x = r \cdot \cos\varphi$ und $z = r \cdot \sin\varphi$ und den Gln. (8), (9), (12) und (13) ist die radiale Trägerströmung:

$$s_{er} = s_{ir} = -D_a\, dn_e/dr - D_a\, n_e\, a \cos\varphi. \qquad (19)$$

Da ϱ unabhängig von φ sein muß, wie aus Gl. (15) bei über dem Querschnitt konstant angenommenen a und b

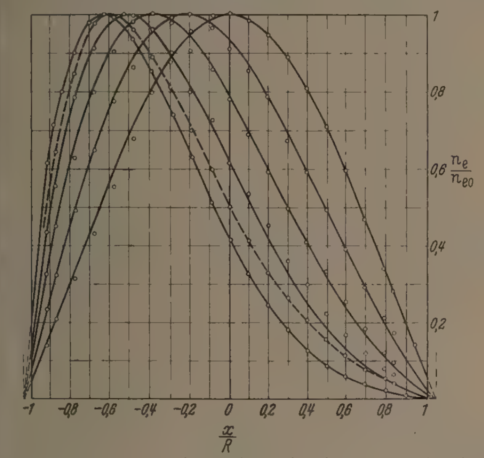


Abb. 2. Vergleich des berechneten (———) und gemessenen (o—o) relativen Verlaufs der Ladungsträgerdichte n_e/n_{e0} über den Querschnitt der positiven Säule bei $H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10 [Oe]. $I_A = 20$ A; $T_G = 50°$C; $p = 10{,}77 \cdot 10^{-3}$ Torr

hervorgeht, kann zur Berechnung von ϱ $\varphi = \pi/2$ gesetzt werden, so daß der zweite Term in der Klammer der Gl. (19) fortfällt. Bei diesem Winkel geht die Wandströmung s_{ew} in die der ungestörten positiven Säule über. Der ambipolare Diffusionsstrom zur Wand $e \cdot s_{ew}$, der dem Elektronenanlaufstrom gegen die Potentialdifferenz Plasmarand-Wand $(U_w - U_R)$ entspricht, kann daher nach [9], wenn man Gl. (14) in G. (19) einsetzt $(r = R)$, geschrieben werden:

$$\left.\begin{aligned} &(e\, n_{ew}\, \bar{v}/4)\, e^{-(U_w - U_R)/U_e} \\ &\quad = (e\, n_{ew}\, D_a/R)(\lambda_1/\varrho)\, J_1(\lambda_1/\varrho)/J_0(\lambda_1/\varrho). \end{aligned}\right\} \qquad (20)$$

Mit genügender Näherung ergibt sich aus Gl. (20):

$$\left.\begin{aligned} &\varrho = (4 D_a/R\bar{v})(j_{es}/j_{is})_{H=0} + 1 \\ \text{mit}\quad &\bar{v} = \sqrt{8kT_e/\pi m_e}. \end{aligned}\right\} \qquad (21)$$

Die Gl. (21) entspricht dem Ergebnis von LUDWIG [9] für die ungestörte positive Säule, so daß das magnetische Querfeld lediglich durch die veränderten Werte der Elektronentemperatur und des ambipolaren Diffusionskoeffizienten in die Gleichung eingeht. Das Verhältnis $(j_{es}/j_{is})_{H=0}$ wird als konstant angesehen.

Änderung der mittleren Elektronenbeweglichkeit in Anodenrichtung

Aus der zweiten Gleichung der Gl. (1) erhält man für die Elektronenströmung in Richtung der Anode:

$$\left.\begin{aligned} s_{ey} = n_e\bar{\dot{y}} = -f_\alpha b_{He} n_e E_y - f_\beta h_e b_{He} n_e E_x - \\ - f_\beta h_e D_{He}\, \partial n_e/\partial x. \end{aligned}\right\} \qquad (22)$$

Berechnet man E_x unter Berücksichtigung der Plasmabedingung $n_e = n_i$ und der ambipolaren Diffusion $s_{ex} = s_{ix}$ aus den Gln. (7) und setzt es in Gl. (22) ein, so ergibt sich mit der Beschränkung auf schwache magnetische Felder, entsprechend der Gl. (12)

$$s_{ey} = -n_e E_y f_\alpha b_{He}[1 + (f_\beta/f_\alpha)^2 h_e^2]. \qquad (23)$$

Da ohne Magnetfeld die Elektronenströmung in Anodenrichtung $s_{ey} = -b_e n_e E_y$ ist, kann man diesen Ansatz bei Einwirkung eines magnetischen Querfeldes beibehalten, wenn man die mittlere Elektronenbeweglichkeit in Anodenrichtung mit dem Faktor

$$q = f_\alpha \frac{(1 + (f_\beta/f_\alpha)^2 h_e^2)}{(1 + h_e^2)} \qquad (24)$$

versieht. Dieser Faktor entspricht der Gl. (9) in der Arbeit von TONKS [5], dort wird ihm jedoch ein Geltungsbereich bis zu unendlich hohen Feldstärken zugesprochen.

Änderung der Ladungsträgerverluste

Die Trägerverluste, die nach SCHOTTKY [7] nur durch Abdiffusion und Rekombination an der Wand erfolgen, müssen im stationären Zustand im Gleichgewicht mit der Trägerneuerzeugung sein. Daher ist das τ der Gl. (10) identisch mit der mittleren Lebensdauer der Träger. Aus der Randbedingung bei der Berechnung der Trägerverteilung über den Entladungsquerschnitt Gl. (13) und (15) ergibt sich für schwache magnetische Felder:

$$1/\tau = D_a(\lambda_1/R)^2 + D_a(a/2)^2. \qquad (25)$$

Der erste Term der Gl. (25) entspricht dem Ausdruck für die mittlere Trägerlebensdauer der ungestörten positiven Säule. Der zweite Term gibt die Zunahme der Trägerverluste an der Wand auf Grund des magnetischen Querfeldes wieder. Die Gl. (25) wird später in der Form

$$\tau = \frac{\tau_0}{(1 + (\varrho R \cdot a/2\lambda_1)^2)} = \tau_0 \cdot \psi \qquad (26)$$

verwendet, dabei ist mit $D_a \sim U_e \cdot b_i$;

$$\tau_0 = (1/U_e b_i)(\varrho R/\lambda_1)^2 \quad \text{und} \quad \psi = 1/[1 + (\varrho R \cdot a/2\lambda_1)^2]. \qquad (27)$$

Berechnung der maximalen Trägerdichte

Das magnetische Querfeld, das die Trägerverteilung über den Querschnitt der positiven Säule seitlich abdrängt, verschiebt dadurch nicht nur das Trägerdichtemaximum aus der Mitte des Entladungsrohres, sondern erhöht es auch. Dies ist an der später beschriebenen Meßreihe der Ladungsträgerverteilung über den Querschnitt in Abb. 3 deutlich sichtbar. Zur Berechnung der maximalen Trägerdichte n_{e0} wird die Definitionsgleichung der Beweglichkeit benutzt (der Stromanteil der positiven Ionen wird vernachlässigt):

$$I_A = e\, q\, b_e N_e E_y. \qquad (28)$$

Bezeichnet man mit N_e die Gesamtzahl der Elektronen innerhalb der Längeneinheit der positiven Säule, so ist mit Gl. (14):

$$N_e = \int_0^{2\pi}\int_0^R A\, e^{(a/2) r\cos\varphi}\, J_0(\lambda_1 r/\varrho R)\, r\, d\varphi\, dr. \qquad (29)$$

Da die Trägerverluste nur durch die ambipolare Diffusion zur Wand erfolgen, gilt:

$$N_e/\tau = R \int_0^{2\pi} s_{ew}\, d\varphi. \tag{30}$$

Einsetzen der Gl. (19) und (25) in (30) ermöglicht zusammen mit den mittels der Integraldarstellung der

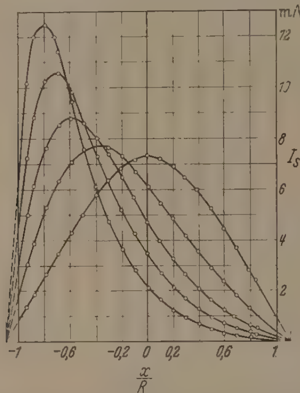


Abb. 3. Meßwerte des Sonden-Sättigungsstromes (Ladungsträgerdichte) über den Querschnitt der positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld $H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10,0 [Oe] bei $I_A = 20$ A; $T_G = 40°$ C; $p = 5{,}33 \cdot 10^{-3}$ Torr

Bessel-Funktionen [10] gelösten bestimmten Integralen, die in [11] tabelliert sind,

$$\left.\begin{aligned} &\int_0^{2\pi} \cos\varphi \cdot e^{x\cos\varphi}\, d\varphi = -2\pi i J_1(i x); \\ &\int_0^{2\pi} e^{x\cos\varphi}\, d\varphi = 2\pi J_0(i x) \end{aligned}\right\} \tag{31}$$

eine geschlossene Auswertung des Doppelintegrals der Gl. (29):

$$\left.\begin{aligned} &\int_0^{2\pi}\int_0^{R} e^{(a/2)r\cos\varphi} J_0(\lambda_1 r/\varrho R)\, r\, d\varphi\, dr \\ &= \frac{-(Ra/2) J_0(\lambda_1/\varrho)\, 2\pi i J_1(i Ra/2) + (\lambda_1/\varrho) J_1(\lambda_1/\varrho)\, 2\pi J_0(i Ra/2)}{(\lambda_1/\varrho R)^2 + (a/2)^2}. \end{aligned}\right\} \tag{32}$$

Das Trägerdichtemaximum an der Stelle x^* ergibt sich somit aus den Gln. (28), (29), (16) und (32):

$$\left.\begin{aligned} n_{e0} &= \frac{I_A}{2\pi e q b_e E_y A^*} \times \\ &\times \left[\frac{(\lambda_1/\varrho \cdot R)^2 + (a/2)^2}{-\left(\frac{R\cdot a}{2}\right) J_0\left(\frac{\lambda_1}{\varrho}\right) i J_1\left(\frac{i Ra}{2}\right) + \left(\frac{\lambda_1}{\varrho}\right) J_1\left(\frac{\lambda_1}{\varrho}\right) J_0\left(\frac{i\cdot Ra}{2}\right)}\right]. \end{aligned}\right\} \tag{33}$$

Änderung der Diffusionsverluste der metastabil angeregten Gasatome

Für die im Anschluß an diesen Abschnitt folgende Berechnung der Elektronentemperatur und des Längsgradienten einer positiven Säule in Abhängigkeit von der Feldstärke des Magnetfeldes, müssen auch die durch das Magnetfeld vermehrten Diffusionsverluste der metastabil angeregten Gasatome berücksichtigt werden. Die Änderung der mittleren Lebensdauer dieser Metastabilen wird analog zu derjenigen der Träger berechnet. Die große Lebensdauer der metastabil angeregten Atome bewirkt nämlich, daß ihre Rückkehr in den Grundzustand genau so wie bei den Trägern praktisch nur durch Abdiffusion zu den Wänden erfolgt. Es wird vorausgesetzt, daß die Metastabilen ihre Anregungsenergie beim Auftreffen auf die Wand abgeben. Zur Berechnung der Diffusionsverluste ist die Dichteverteilung der metastabil angeregten Gasatome über den Querschnitt erforderlich. In erster Näherung soll diese Dichteverteilung proportional der Verteilung der Ladungsträger sein. Entsprechend der Gl. (14) wird gesetzt:

$$n_m = A_m e^{(a/2)r\cos\varphi} J_0(\lambda_1 r/\varrho_m R), \tag{34}$$

wie in Gl. (30) ergeben sich die Diffusionsverluste zu

$$R \int_0^{2\pi} s_{mw}\, d\varphi = N_m/\tau_1 \tag{35}$$

mit

$$s_{mw} = -D_m(\partial n_m/\partial r)_{r=R}$$

und

$$N_m = \int_0^{2\pi}\int_0^{R} A_m e^{(a/2)r\cos\varphi} J_0(\lambda_1 r/\varrho_m R)\, r\, d\varphi\, dr.$$

Setzt man die Gl. (34) in (35) ein, und verwendet die Gl. (32) für das Doppelintegral, wobei lediglich ϱ_m für ϱ einzusetzen ist, sowie die Integrallösungen Gl. (31), dann ist:

$$\left.\begin{aligned} 1/\tau_1 &= D_m \frac{(1-\sigma)}{(1+\sigma)} \left[(\lambda_1/\varrho_m R)^2 + (a/2)^2\right] \\ \text{mit} \quad \sigma &= \frac{-(Ra/2) J_0(\lambda_1/\varrho_m)\, i J_1(i Ra/\varrho\, 2)}{(\lambda_1/\varrho_m) J_1(\lambda_1/\varrho_m) \cdot J_0(i Ra/2)}. \end{aligned}\right\} \tag{36}$$

Für den Fall, daß das Magnetfeld $H = 0$ ist ($a = 0$ und $\sigma = 0$), wird:

$$1/\tau_{10} = D_m(\lambda_1/\varrho_m R)^2. \tag{37}$$

Dieser Ansatz für die Lebensdauer der metastabil angeregten Gasatome für die ungestörte positive Säule wurde von LUDWIG [9] benutzt. Ein Vergleich der Gl. (36) mit der Gl. (25) zeigt, daß die Erhöhung der Diffusionsverluste an Metastabilen durch das homogene magnetische Querfeld kleiner ist als bei den Ladungsträgern. Das liegt daran, daß das Magnetfeld auf die metastabil angeregten Gasatome keine Kraftwirkung direkt ausübt. In der späteren Anwendung wird die Gl. (36) in folgender Form verwendet:

$$\tau_1 = \chi \cdot \tau_{10}; \quad \chi = \frac{(1+\sigma)}{(1-\sigma)} \frac{1}{(1 + (\varrho_m Ra/2\lambda_1)^2)}. \tag{38}$$

Berechnung der Elektronentemperatur und des Längsgradienten

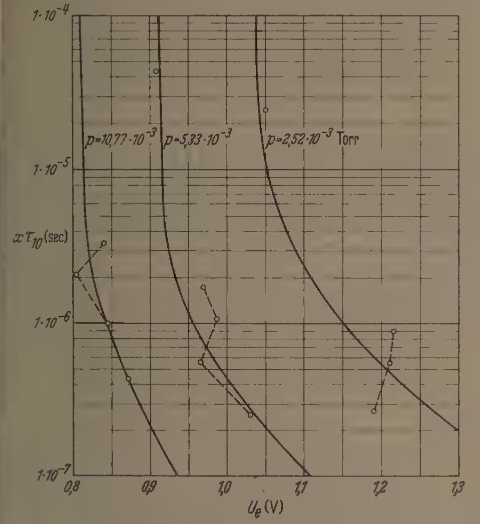
In der schon mehrfach erwähnten Arbeit von LUDWIG [9] wird die Theorie der Niederdrucksäule in ihrer Anwendung auf die Quecksilberdampfentladung in der Weise erweitert, daß ein vereinfachtes Termschema verwendet wird und damit die bedeutenden Stufenprozesse über die bei diesem Atom vorhandenen zwei metastabilen Niveaus berücksichtigt werden. Zur Bestimmung der Elektronentemperatur in Abhängigkeit vom mittleren Ionisierungsgrad $x = n_e/n$ wurde von LUDWIG für kleinen Ionisierungsgrad die Gleichung:

$$x\tau_1 = \frac{1 - \tau n s_{0\infty}/Z}{n B_{01}\left[(\tau n s_{0\infty}/Z)(1 + \omega_1 s_{1\infty}/s_{0\infty}) - 1\right]} = f(U_e; p) \tag{39}$$

angegeben. Die Größen auf der rechten Seite der Gleichung sind bei gegebenem Gefäßradius nur Funktionen

r Elektronentemperatur und der Gasdichte $n = n_1 \cdot p$. aher ist die Elektronentemperatur implizit als ınktion des Ionisierungsgrades gegeben, wenn die ittlere Lebensdauer der metastabil angeregten Gasome τ_1 bekannt ist. τ_1 wird experimentell bestimmt, dem man $\tau_1 = C \cdot p$ setzt und Meßreihen von $x \cdot p = U_e; p)$ mit der nach Gl. (39) berechneten Funktion $\tau_1 = C \cdot x \cdot p = (U_e; p)$ vergleicht (Abb. 4).

Für die Berechnung der mittleren Elektronenmperatur bei der Störung durch ein schwaches, omogenes magnetisches Querfeld sind lediglich in l. (39) die vermehrten Verluste an Ladungsträgern



bb. 4. $x \cdot \tau_{10}$ in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur; der berechete Verlauf für $p = 2{,}52 \cdot 10^{-3}$; $5{,}33 \cdot 10^{-3}$; $10{,}77 \cdot 10^{-3}$ Torr und die Meßwerte

ınd metastabil angeregten Gasatomen zu berücksichtigen. Für die mittlere Lebensdauer der Ladungsräger ist daher die Gl. (26) und für die mittlere Lebensdauer der metastabil angeregten Gasatome die Gl. (38) einzusetzen. Außerdem wird für die Änderung des mittleren Ionisierungsgrades x ein Faktor $\varkappa$ eingeführt.

$$\left.\begin{aligned} x\tau_1 &= x_0 \varkappa \tau_{10} \chi \\ &= \frac{1 - \tau_0 \psi n s_{0\infty}/Z}{n B_{01}[(\tau_0 \psi n s_{0\infty}/Z)(1 + \omega_1 s_{1\infty}/s_{0\infty}) - 1]} = f(U_e; a; p), \end{aligned}\right\} \quad (40)$$

τ_0 kann als mittlere Lebensdauer der Träger der ungestörten Säule ($H = 0$) angesehen werden, da man im interessierenden Bereich $U_e \sim (E_y/p)^{0,5}$ setzen kann und damit die Abhängigkeit von E_y und U_e eliminiert wird [Gl. (27)], wenn man nach LUDWIG $b_i = b_{i\,1}/p = b_{i\,0} \cdot (E_y/p)^{-0,5}$ und ϱ in erster Näherung konstant annimmt. Für die jeweiligen Parameterwerte a (Magnetfeld) und p (Gasdichte) ist demnach mit Gl. (40) der Ionisierungsgrad x als Funktion der Elektronentemperatur U_e für die positive Säule im homogenen magnetischen Querfeld gegeben. Abb. 5 zeigt den Funktionsverlauf von $x\tau_1$ in Abhängigkeit von U_e bei verschiedenen Parameterwerten a und p. An Hand der Kurvenschar ist zu erkennen, daß mit steigendem a, also wachsendem Magnetfeld, die Elektronentemperatur ansteigt. Desgleichen ergibt eine kleiner werdende mittlere Lebensdauer der Metastabilen ein Ansteigen der Elektronentemperatur. Die durch die Einwirkung des Magnetfeldes verursachten erhöhten Verluste führen demnach zur Erhöhung der Elektronentemperatur, was wiederum ein Ansteigen des Längsgradienten zur Folge hat.

Die Berechnung des Längsgradienten nach LUDWIG [9] erfolgt aus der mittels der effektiven Stoßwahrscheinlichkeit errechneten Anzahl der Anregungen und Ionisierungen pro Zeiteinheit multipliziert mit der bei jedem derartigen Stoß benötigten Energie. Der Gesamtleistungsbedarf, der sich durch Summation über alle Anregungsstufen ergibt, wird der Stromdichte multipliziert mit dem Längsgradienten gleichgesetzt.

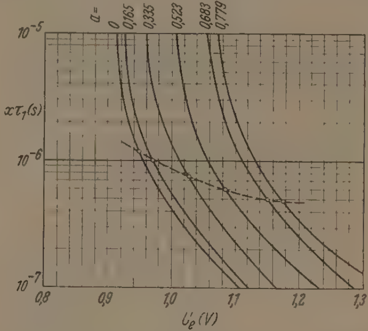


Abb. 5. Bestimmung der Elektronentemperatur in Abhängigkeit vom magnetischen Querfeld aus dem Verlauf von $x \cdot \tau_1 = f(U_e; a; p)$; $p = 5{,}33 \cdot 10^{-3}$ Torr ($T_G = 40°$ C)

In der Erweiterung auf den Fall der positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld ist die Bestimmungsgleichung für den Längsgradienten in der speziellen Anwendung auf die Quecksilberdampfentladung bei Beschränkung auf ein- und zweistufige Prozesse und kleinen Ionisierungsgrad:

$$\left.\begin{aligned} \left[\frac{E_y}{p}\right]^{1,75} = \frac{n_1}{q b_{e_0} Z} \Bigg[& \frac{U_{01} s_{01}}{1 + n x_0 \varkappa \tau_{10} \chi \cdot B_{01}} + \\ & + \frac{U_{02} s_{02}}{1 + n x_0 \varkappa \tau_2 B_{02}} + \frac{U_{03} s_{03}}{1 + n x_0 \varkappa \tau_3 B_{03}} + \\ & + (U_{0\infty} + U_k) s_{0\infty} + \frac{n x_0 \varkappa \tau_{10} \chi B_{01}}{1 + n x_0 \varkappa \tau_{10} \chi B_{01}} \times \\ & \times [\omega_1 U_{14} s_{14} + (U_{1\infty} + U_k) \cdot s_{0\infty} \, \omega_1 s_{1\infty}/s_{0\infty}] \Bigg]. \end{aligned}\right\} \quad (41)$$

Das magnetische Querfeld wird in der Gl. (41) lediglich durch den Faktor q für die Änderung der Elektronenbeweglichkeit nach Gl. (24), die verminderte mittlere Lebensdauer der metastabil angeregten Gasatome Gl. (38) sowie durch den schon oben verwendeten Faktor $\varkappa$ berücksichtigt. Die mittlere effektive Lebensdauer der Resonanzniveaus τ_2 und τ_3 werden als unabhängig vom magnetischen Querfeld angesehen, da sie proportional zur Gasdichte sind. Der Einfluß des magnetischen Feldes auf den Längsgradienten erfolgt in erster Linie durch das Ansteigen der Elektronentemperatur. Da die Stoßwahrscheinlichkeiten $s_{\mu\nu}$ exponentiell von der Elektronentemperatur abhängen, ergeben schon kleine Änderungen der Elektronentemperatur eine merkliche Änderung des Gradienten.

Aus der dargestellten Theorie der positiven Niederdrucksäule im homogenen magnetischen Querfeld geht hervor, daß die Größe a, die in Gl. (13) definiert ist, der entscheidende Faktor für die Einwirkungen des Magnetfeldes auf die Entladung ist. Setzt man $D_a \approx b_i \cdot U_e$ und die von LUDWIG [9] verwendete

Beziehung für die Elektronenbeweglichkeit

$$b_{e1} = b_e \cdot p = b_{e0} (E_y/p)^{-\varkappa_e} \left[\frac{\text{cm}^2\,\text{Torr}}{\text{V s}}\right] \qquad (42)$$

$b_{e0} = 5 \cdot 10^5$; $\varkappa_e = 0{,}25$; bzw. $b_{e0} = 7{,}5 \cdot 10^5$; $\varkappa_e = 0{,}5$
(je nach Bereich, s. Abb. 6)

in den Ausdruck für a ein, so ist:

$$a = (f_\beta / f_\alpha \alpha_e) \sqrt{3/2}\, (b_{e0} \mu_0 H/U_e) (E_y/p)^{1-\varkappa_e}. \qquad (43)$$

Die Faktoren f_α und f_β sind Funktionen der dimensionslosen Größe h_e der Gl. (3), die mit Gl. (42) wie folgt geschrieben werden kann:

$$h_e = \sqrt{3/2}\, (1/\alpha_e) (b_{e0} \mu_0 H/p) (E_y/p)^{-\varkappa_e}. \qquad (44)$$

Somit ist a selbst noch eine Funktion der Elektronentemperatur U_e und des Längsgradienten E_y. Vernachlässigt man die Abhängigkeit des h_e von E_y, weil die Änderung der Faktoren f_α und f_β nur unwesentlich ist, so müßte $U_e \sim E_y^{(1-\varkappa_e)}$ gelten, wenn die durch das Magnetfeld hervorgerufene Ladungsträgerverteilung stabil sein soll, da mit wachsendem a nach Gl. (40) und (41) sowohl die Elektronentemperatur als auch der Längsgradient ansteigen. Der bereits oben verwendete Ansatz $U_e \sim (E_y/p)^{2\varkappa_e}$, der sich mit Verwendung der Gl. (V, 13) und (V, 15) aus [13] ergibt, reicht daher für $\varkappa_e = 0{,}25$ nicht aus, um zu stabilen Verhältnissen zu führen. Messungen der Elektronenbeweglichkeit (Abb. 6) ergaben jedoch im Bereich niederer Gasdichte eine gute Übereinstimmung mit dem von LUDWIG nach Klarfeldschen Messungen angenommenen Wert $\varkappa_e = 0{,}25$, so daß die Stabilitätsschwierigkeit bestehen bleibt. Als Ursache kann angesehen werden die Vernachlässigung des magnetischen Eigenfeldes des Entladungsstromes, das eine dem äußeren Magnetfeld entgegengerichtete Wirkung hat und die infolge der Abdrängung der Ladungsträger eintretende Erhöhung der Trägerdichte, die eine Verkleinerung der Elektronenbeweglichkeit hervorruft. Außerdem ist zu berücksichtigen, daß experimentell immer eine positive Säule endlicher Länge vorliegt.

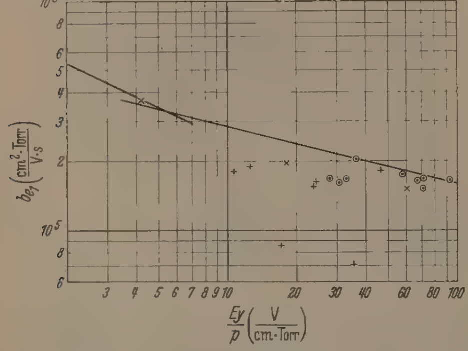


Abb. 6. Die Elektronenbeweglichkeit in Hg-Dampf für $p = 1$ Torr als Funktion von E_y/p. ○ und × Meßwerte aus [12; 9]; + eigene Meßwerte; ausgezogene Linie entspricht der Beziehung $b_{e1} = b_{e0}/(E_y/p)$; $b_{e0} = 5 \cdot 10^5$; $\varkappa_e = 0{,}25$ und $b_{e0} = 7{,}5 \cdot 10^5$; $\varkappa_e = 0{,}5$

Aus der Gl. (43) erkennt man, daß der für die Einwirkung des magnetischen Querfeldes auf die positive Säule maßgebliche Faktor a unabhängig von der Trägerdichte und damit vom Anodenstrom ist. Es ist jedoch zu erwarten, daß bei steigendem Strom, d.h. steigender Ladungsträgerdichte, die Elektronenbeweglichkeit kleiner wird und sich damit die Einwirkung des Magnetfeldes vermindert. Daher besteht die Möglichkeit, wenn man von dem Einfluß des magnetischen Eigenfeldes auch bei höheren Anodenströmen absehen kann, die Änderung der Elektronenbeweglichkeit durch die Einwirkung des magnetischen Querfeldes auf die Ladungsträgerverteilung zu bestimmen. Für größere Elektronendichten ist es notwendig, die Langevin-Gleichung für die Elektronenbeweglichkeit zu erweitern, da die Wechselwirkung der Elektronen mit den Ionen hinzutritt. Nach GVOSDOVER [14] (s. auch [16] und [17]) ergibt sich:

$$\left.\begin{aligned} b_e &= \frac{e}{\sqrt{\pi k T_e m_e}\, [(1/\lambda_e) + e^4 n_e/\gamma (k T_e)^2]} \\ \gamma &= \frac{2}{(\pi/2) \ln (3 k T_e / 2 e^2 n_e^{\frac{1}{3}})} \end{aligned}\right\} \qquad (45)$$

(Gaußsches Maßsystem!). Mit steigender Elektronendichte n_e fällt entsprechend der Gl. (45) die Elektronenbeweglichkeit, was experimentell noch nicht eindeutig gesichert ist [16]. Dies muß sich, weil die Elektronenbeweglichkeit linear in die Größe a eingeht, in einer Verminderung des Einflusses des äußeren magnetischen Querfeldes auf die Ladungsträgerverteilung (Maximaverschiebung) der positiven Säule bemerkbar machen.

Prüfung der Theorie

Versuchsentladungsgefäß und Meßanordnung

Zur Untersuchung der positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld mittels Langmuir-Sonde wurde das in Abb. 7 im Schnitt gezeigte Quecksilberdampf-Entladungsgefäß verwendet. Wie aus der Abbildung zu ersehen, besteht das Gefäß, das eine Länge von 1400 mm zwischen Anode und Kathode hat, aus drei Teilen, dem oberen Anodenteil, dem mittleren Meßgefäß und dem unteren Kathodengefäß. Das Meßgefäß, das vollkommen aus unmagnetischem Material (Remanit 1880) gefertigt ist, um das magnetische Querfeld hindurchzulassen, hat eine Länge von 600 mm und enthält in seiner Mitte eine über den Querschnitt des Entladungsrohres verschiebbare Zylindersonde und je eine darunter und darüber im gegenseitigen Abstand von 150 mm feststehend angebrachte Zylindersonde in der Gefäßachse. Alle drei Gefäßteile und die Kathode sind von Wassermänteln umgeben. Die Wassertemperatur konnte mittels Kontaktthermometer, auf $\pm 0{,}3°$ C konstant gehalten werden. Der Durchmesser des Entladungsrohres beträgt 204 mm. Dieser wurde unter anderem deshalb so groß gewählt, weil, wie im theoretischen Teil der Arbeit gezeigt, die relative Einwirkung eines magnetischen Querfeldes proportional dem Säulenradius ist. Da die Theorie und die Sondenmeßtechnik auf die Anwendung schwacher magnetischer Felder beschränkt ist, kann man nur mittels eines großen Entladungsdurchmessers merkbare Beeinflussungen der Ladungsträgerverteilung über den Querschnitt erhalten. Für die Sondenmessungen bei niedrigen Anodenstromstärken (bis 30 A) wurde das Versuchsgefäß mit Gleichstrom betrieben, den ein sechsanodiger Gleichrichter mit magnetischer Regelung auf $\pm 1\%$ konstant lieferte. Das für die Untersuchungen erforderliche homogene magnetische Feld wurde von einer Helmholtz-Spule, Durchmesser 800 mm, mit Batteriestrom erzeugt.

Bei Messungen mit höheren Anodenströmen (bis 00 A) wurde das Versuchsgefäß parallel mit einem chsanodigen Gleichrichter betrieben, wobei statt ner Anode des mehranodigen Gefäßes das Versuchsefäß eingesetzt wurde. Der Anodenstrom über das ersuchsgefäß war daher ein intermittierender Gleichrom, der aus etwa 120° el. breiten Stromimpulsen estand. Dementsprechend mußte auch der Sondenrom intermittierend gemessen werden.

Die in dem Meßgefäß angeordneten Zylindersonden estehen aus einem 0,2 mm starken Wolframdraht von mm Länge, der durch ein Quarzröhrchen isoliert ist.

Es war die Frage zu klären, ob die Messung er Sondencharakteristik (Sondenstrom—Sondenspanung) auch unter der Einwirkung eines magnetischen 'eldes eine Bestimmung der Elektronentemperatur nd des Plasmapotentials nach LANGMUIR und MOTT-MITH [17] ermöglicht. SPIWAK und REICHRUDEL [18] aben die Theorie der Zylindersonde in einem achsenarallelen Magnetfeld angegeben. Danach ist eine erkliche Beeinflussung des Sondenstromes schon bei chwachen Magnetfeldern zu erwarten, wenn die Sonde 'lasmapotential führt und in unmittelbarer Nähe lavon. Die Anwendung beliebiger Magnetfeldstärken st daher bei Sondenmessungen nicht möglich. Die zur 'rüfung der obigen theoretischen Ergebnisse notwenigen magnetischen Feldstärken sind jedoch sehr klein. Mit Benutzung der theoretischen Beziehung [18] ergibt sich, daß für die größte bei den Messungen verwendete magnetische Feldstärke von 10 Oe der Elektronenstrom zur Sonde bei Plasmapotential um 20% vermindert wird, jedoch der Sondenstrom bei $-0,3$ V gegen Plasmapotential bereits in den Verlauf ler ungestörten Sonde übergeht. Die Einwirkung des Magnetfeldes auf die Messung der Elektronentemperatur dürfte demnach praktisch unbedeutend sein, es ist jedoch mit einer merklichen Verminderung des Elektronensättigungsstromes zu rechnen. Da die zu den Messungen benutzte Sonde quer zum Magnetfeld gerichtet ist, im Gegensatz zu dem bei [18] vorausgesetzten achsenparallelen Längsfeld, ist eine geringere Beeinflussung der Sondencharakteristik durch das Magnetfeld zu erwarten. Außerdem wurde bis auf den Vergleich der theoretischen und gemessenen Trägerdichtemaxima lediglich die relative Änderung des Sondensättigungsstromes über den Querschnitt benötigt.

Im Bereich der niederen Anodenströme und Elektronendichten wurden die Sondencharakteristiken in der üblichen Weise mit einer einstellbaren Sondengleichspannung gegen Kathode aufgenommen. Die Sondenmessungen im Bereich hoher Anodenströme wurden dagegen mit einem Synchronschalter (Vektormesser) ausgeführt, der die Sonde innerhalb einer 50 Hz-Periode $2 \cdot 10^{-3}$ sec lang an eine Gleichspannung legte. Diese Kontaktzeit lag phasenmäßig in der Mitte des Anodenstromimpulses. Am Sondenstrommesser stellt sich dabei als Mittelwert $^1/_{10}$ des wirklichen Sondenstromes ein.

Meßergebnisse

Die Trägerverteilung

Die Beeinflussung der Trägerverteilung durch das magnetische Querfeld wurde durch Messung der Sondensättigungsströme mittels der auf der x-Achse quer zum Magnetfeld H beweglichen Sonde bei verschiedenen Gefäßtemperaturen (30° C; 40° C; 50° C) und einem Anodenstrom von 20 A bestimmt. Die Sättigungsströme werden als proportional zur Trägerdichte angenommen. Als Beispiel ist die Meßreihe bei der Gefäßtemperatur von 40° C, $p = 5,33 \cdot 10^{-3}$ Torr bei

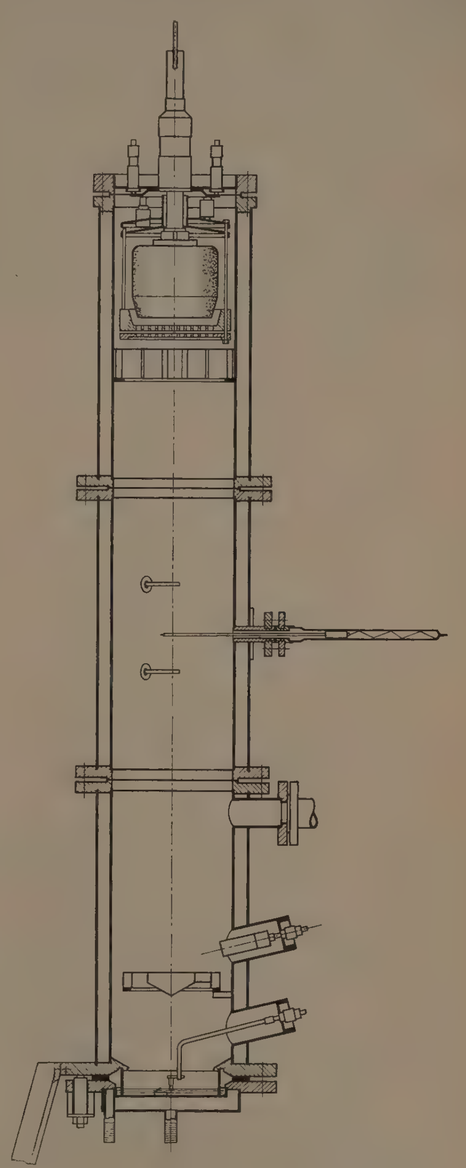


Abb. 7. Schnittbild des Versuchsgefäßes

$H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10 [Oe] in Abb. 3 wiedergegeben. Der Wandkorrekturfaktor ϱ wurde, wie aus Abb. 3 zu ersehen, durch Extrapolation der Meßwerte in unmittelbarer Wandnähe bei $H = 0$ bestimmt. Eine Berechnung nach Gl. (21) war nicht möglich, da ohne ebene Wandsonde das Verhältnis (j_{es}/j_{is}) nicht einwandfrei gemessen werden konnte. ϱ wurde als unabhängig von dem magnetischen Querfeld angenommen, da sich Gl. (21) nur mit $U_e^{0,5}$ ändert und U_e durch das Magnetfeld nur wenig geändert wird (Tabelle 1). Wie aus

Abb. 3 zu ersehen, lassen sich auch die Meßwerte bei $H \neq 0$ in dieser Weise gut extrapolieren, was als Bestätigung für die Richtigkeit der Wandkorrektur der

Tabelle 1. $I_A = 20$ A

H [Oe]	$T_G = 30°$ C, $p = 2{,}52 \cdot 10^{-3}$ Torr		$T_G = 40°$ C, $p = 5{,}33 \cdot 10^{-3}$ Torr		$T_G = 50°$ C, $p = 10{,}77 \cdot 10^{-3}$ Torr	
	gemessen U_e [V]	berechnet U_e [V]	gemessen U_e [V]	berechnet U_e [V]	gemessen U_e [V]	berechnet U_e [V]
0	1,20	1,21	1,01	0,95	0,83	0,83
2,5	1,22	1,26	0,99	0,97	0,83	0,835
5,0	1,30	1,41	1,02	1,03	0,84	0,85
7,5			1,02	1,08	0,86	0,87
10,0			1,01	1,14	0,86	0,89

Trägerverteilung im magnetischen Querfeld nach Gl. (21) aufgefaßt werden kann. Der große Radius des Entladungsrohres ($R = 10{,}2$ cm) läßt die Einwirkung des Magnetfeldes auf die Trägerverteilung (s. auch Abb. 10) besonders stark werden. Bei Stromrichter-

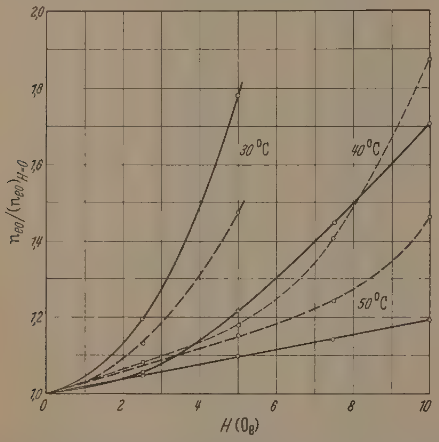


Abb. 8. Berechnete (– – – –) und gemessene (———) relative Erhöhung der Ladungsträgerdichtemaxima in Abhängigkeit von der magnetischen Querfeldstärke für die Gefäßtemperaturen $T_G = 30°$ C; 40° C; 50° C

gefäßen können daher verhältnismäßig kleine magnetische Feldstärken beachtliche seitliche Abdrängungen der Ladungsträger hervorrufen, die gleichzeitig mit einer Erhöhung des Trägerdichtemaximums und einer hohen einseitigen Wandträgerdichte verbunden sind. Es ist verständlich, daß diese Erscheinungen die Betriebseigenschaften eines Stromrichtergefäßes verschlechtern und die Verluste und damit den Längsgradienten erhöhen.

Zur Prüfung der theoretisch abgeleiteten Trägerverteilung über den Querschnitt der positiven Säule bei der Einwirkung des magnetischen Querfeldes wurde aus den Meßwerten der Elektronentemperatur und des Längsgradienten die Größe h_e nach Gl. (44) und a nach Gl. (43) bestimmt. Einsetzen der theoretischen a-Werte in die Gleichung der relativen Ladungsträgerverteilung Gl. (17) ergibt bei den jeweiligen Magnetfeldstärken, die in den Abb. 1 und 2 wiedergegebenen Trägerverteilungen (ausgezogene Kurven). Sie sind mit den auf das jeweilige Trägermaximum bezogenen gemessenen Verteilungen (0-Meßpunkte) verglichen. Die Übereinstimmung ist unter der Berücksichtigung der gemachten Vereinfachungen, einheitliche Elektronentemperatur und Gasdichte über den Querschnitt, sehr gut. Die Magnetfeldeinwirkung auf die positive Säule und ihre Abhängigkeit von der Gasdichte wird demnach von der Theorie gut wiedergegeben.

Die Beweglichkeit der Ladungsträger

Die Elektronenbeweglichkeit wurde aus den Meßreihen bei Gefäßtemperaturen von 30° C, 40° C, 50° C und den Anodenströmen von 5, 20 und 300 A bei $H = 0$ bestimmt. Die für b_{e1} gefundenen Werte wurden in Abhängigkeit von E_y/p in Abb. 6 eingezeichnet und mit dem von LUDWIG [9] benutzten Klarfeldschen Messungen [12] verglichen. Die Übereinstimmung der Meßwerte ($I_A = 5$ und 20 A) mit der von LUDWIG angenommenen Beziehung Gl. (42) für die Elektronenbeweglichkeit, die als Gerade in Abb. 6 erscheint, ist sehr gut, so daß diese übernommen werden konnte. Zwei Meßwerte der Elektronenbeweglichkeit, die beim Anodenstrom von 300 A aufgenommen wurden, sind auf Grund der Gvosdover-Beziehung erheblich kleiner. — Die Ionenbeweglichkeit konnte nicht gemessen werden, sie wurde auf Grund der guten Übereinstimmung in der Elektronenbeweglichkeit in der oben angegebenen Beziehung nach [9] übernommen.

Die maximale Ladungsträgerdichte

Die Meßwerte der Elektronentemperatur und des Längsgradienten und die daraus berechneten h_e- und a-Werte ermöglichen es, die Trägerdichtemaxima n_{e0} für die entsprechenden Magnetfeldstärken aus den Gl. (33) und Gl. (24) zu berechnen. Das Verhältnis des Trägerdichtemaximums für $H \neq 0$ zum Trägerdichtemaximum der ungestörten positiven Säule bei $H = 0$, also die Erhöhung der maximalen Trägerdichte durch das Magnetfeld $n_{e0}/(n_{e0})_{H=0}$ ist in Abb. 8 in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke bei drei verschiedenen Gasdichten eingezeichnet.

Bestimmung der mittleren Lebensdauer der metastabilen Gasatome

Für die Bestimmung der mittleren Lebensdauer τ_{1} der metastabilen Gasatome nach der von LUDWIG angegebenen Methode wurden bei den Gefäßtemperaturen $T_G = 30°$ C; 40° C; 50° C, $H = 0$ und Anodenströmen von 5, 10, 20, 30 A Meßreihen aufgenommen um experimentell den Funktionsverlauf $x \cdot p = f(U_e$ mit p als Parameter zu bestimmen. Der Ionisierungsgrad x wurde als arithmetischer Mittelwert über den Entladungsquerschnitt bestimmt. Für die mittlere Lebensdauer der Metastabilen ergab sich $\tau_{10} = C \cdot p = 0{,}37 \cdot p$. Die mit diesem Wert der Konstante C erhaltene Übereinstimmung der Meßwerte mit den theoretischen Werten nach Gl. (39) ist in Abb. 4 gezeigt. Für die Berechnung der theoretischen Kurvenschar wurde neben den in [9] angegebenen Größen, s_0 und B_{01}, auch die Beziehung $\omega_1 s_{1^*}/s_{0^*} = 4{,}36\, e^{1,4/U}$ verwendet. Dies ist eine durch Probieren bestimmte Größe, weil der Ionisierungsquerschnitt der metastabil angeregten Gasatome nicht bekannt ist. Die gute Übereinstimmung der theoretischen und gemessenen Kurvenschar kann daher als Bestätigung der Ludwigschen Annahme angesehen werden.

Berechnung der Elektronentemperatur und des Längsgradienten

Die Berechnung der Erhöhung der Elektronentemperatur durch ein magnetisches Querfeld wurde nach Gl. (40) vorgenommen. Die a-Werte wurden aus den Meßwerten berechnet. Das bedeutet, daß die zu berechnenden Größen bereits für die Bestimmung der a-Werte erforderlich sind, was nicht notwendig wäre, wenn die Stabilitätsschwierigkeit, die oben dargelegt wurde, nicht bestände. Die Elektronentemperatur U_e wurde aus den Kurvenscharen (Abb. 5) für die jeweiligen magnetischen Feldstärken, die zu den a-Werten gehören, entnommen, wobei die Ordinatenwerte, wie im theoretischen Teil der Arbeit beschrieben, bestimmt wurden. Der Faktor $\varkappa$ konnte für alle Meßreihen gleich 1 gesetzt werden, da die Änderung des quadratischen Mittelwertes des Ionisierungsgrades unter 10% lag. In der Tabelle 1 werden die berechneten Elektronentemperaturen mit den gemessenen verglichen.

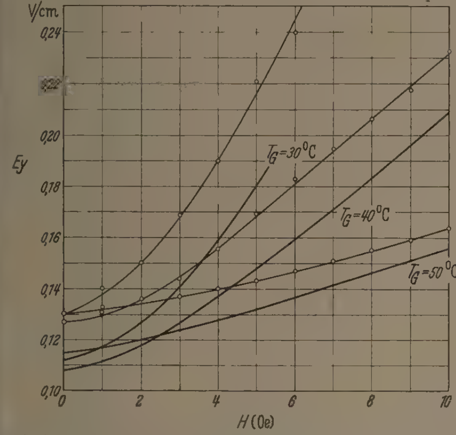


Abb. 9. Der Längsgradient in Abhängigkeit von der magnetischen Querfeldstärke bei $I_A = 20$ A; $T_G = 30°$ C; 40° C; 50° C (——— berechneter Verlauf, o—o Meßwerte)

Die theoretisch bestimmten Werte der Elektronentemperatur U_e ermöglichen nach Gl. (41) die Berechnung des Längsgradienten E_y. In Abb. 9 werden die berechneten Werte des Längsgradienten in Abhängigkeit vom magnetischen Querfeld mit den Meßwerten verglichen. Die Übereinstimmung von Theorie und Messung ist gut.

Die Abhängigkeit der Magnetfeldeinwirkung vom Anodenstrom

Um die Frage der Abhängigkeit der magnetischen Beeinflussung der positiven Säule vom Anodenstrom und damit von der Dichte der Ladungsträger zu klären, wurden die Meßreihen zunächst für einen Anodenstrom von 5 A wiederholt. Es ergaben sich ebenfalls mit der Theorie gut übereinstimmende Ergebnisse, so daß die Verminderung des Anodenstromes von 20 auf 5 A keine Änderung des Magnetfeldeinflusses ergab. Damit ist auch gezeigt, daß das magnetische Eigenfeld des Entladungsstromes bei den Meßreihen mit $I_A = 20$ A vernachlässigbar ist.

Abschließend wurde eine Sondenmeßreihe bei einem Anodenstromscheitelwert von 300 A in der beschriebenen Weise aufgenommen. Für die Anwendung der Theorie der positiven Niederdrucksäule auf die stromstarken technischen Stromrichtergefäße sind Meßreihen im hohen Strombereich notwendig, sie bereiten jedoch erhebliche Schwierigkeiten. Besonders erschwerend ist, daß es bisher keine Meßmöglichkeit der Gasdichte innerhalb der Entladung gibt. Bei niedrigen Anodenströmen wird von allen Autoren die Sattdampfdichte des Quecksilbers entsprechend der Gefäßtemperatur als Neutralgasdichte innerhalb der Entladung angenommen. Bei hohen Anodenströmen müßte jedoch eine Dichteminderung innerhalb der Entladung auf Grund des mit der Ladungsträgerdichte ansteigenden Partialdruckes der Elektronen und der erhöhten Gastemperatur berücksichtigt werden. Andererseits macht sich bei stromstarken Entladungen die Kathode als beachtliche Dampfquelle bemerkbar.

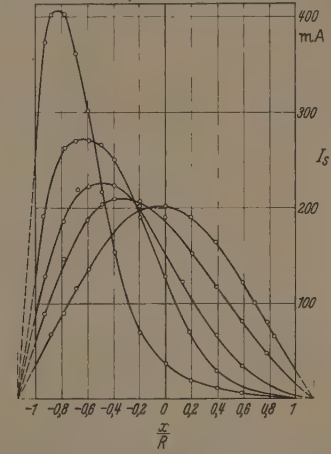


Abb. 10. Meßwerte des Sonden-Sättigungsstromes (Ladungsträgerdichte) über den Querschnitt der positiven Säule im homogenen magnetischen Querfeld $H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10,0 [Oe]; bei $I_A = 300$ Amp; $T_G = 30°$ C

Es ist daher nicht möglich, einen brauchbaren Wert für die Gasdichte anzugeben.

Als Beispiel der über den Querschnitt der positiven Säule gemessenen Trägerdichteverteilungen bei dem Anodenstrom 300 A ist in Abb. 10 die Meßreihe für die Gefäßtemperatur 30° C und das Magnetfeld $H = 0$; 2,5; 5,0; 7,5; 10 [Oe] wiedergegeben. Die Wandkorrekturen wurden in gleicher Weise wie schon beschrieben, aus den Meßwerten für $H = 0$ extrapoliert. Die Gasdichte wurde auf Grund der erwähnten Schwierigkeiten indirekt aus den gemessenen Elektronentemperaturen durch Vergleich mit dem berechneten und im niederen Strombereich überprüften Funktionsverlauf $x\tau_{10} = f(U_e; p)$ Abb. 4 bestimmt. Der asymptotische Verlauf dieser Funktion macht bei hohem Ionisierungsgrad eine genaue Kenntnis des Wertes $x\tau_{10}$ nicht erforderlich, so daß allein die Meßgenauigkeit der mittleren Elektronentemperatur in diese indirekte Bestimmung der Gasdichte p eingeht. In Abb. 4 sind die beiden Meßpunkte für $I_A = 300$ A und $T_G = 30°$ C und 40° C mit den dazugehörigen Werten von $x\tau_{10}$ eingezeichnet und ergeben, daß trotz des hohen Anodenstromes die den Gefäßtemperaturen entsprechenden Sattdampfdichten, wie bei den niedrigen Anodenströmen, als Gasdichte anzunehmen sind. Die Bestimmung der Elektronenbeweglichkeit mittels der Meßwerte ergibt die in Abb. 6 eingezeichneten Werte,

die um etwa 50% kleiner sind als sie für $I_A = 20$ A gefunden wurden. Dieser Effekt ist auf Grund der hohen Trägerdichte ($n_e = 2{,}37 \cdot 10^{12}$ bzw. $4{,}17 \cdot 10^{12}$)

Tabelle 2

H [Oe]	Meßwerte		Theoretische Werte		a/a^*
	U_e [V]	$-x^*$ [cm]	U_e [V]	$-x^*$ [cm]	
$I_A = 300$ A, $T_G = 30°$ C, $p = 2{,}52 \cdot 10^{-3}$ Torr, $\varrho = 1{,}14$					
0	1,05	0	1,04	—	—
2,5	1,05	3,4	1,05	2,7	0,77
5,0	1,09	5,4	1,08	5,2	0,96
7,5	1,12	6,5	1,13	7,4	1,26
10,0	1,20	8,5	1,23	8,9	1,19
$I_A = 300$ A, $T_G = 40°$ C, $p = 5{,}33 \cdot 10^{-3}$ Torr, $\varrho = 1{,}12$					
0	0,91	0	0,91	—	—
2,5	0,94	1,8	0,915	1,9	1,02
5,0	0,94	3,9	0,92	3,3	0,83
7,5	0,98	5,0	0,925	4,5	0,88
10,0	1,01	6,0	0,94	5,7	0,74

und der damit verbundenen Streuung der Elektronen an den Ionen zu erwarten. Die erweiterte Beziehung für die Elektronenbeweglichkeit nach Gvosdover [14], Gl. (45) ergibt für die jeweiligen Gasdichten eine Ver-

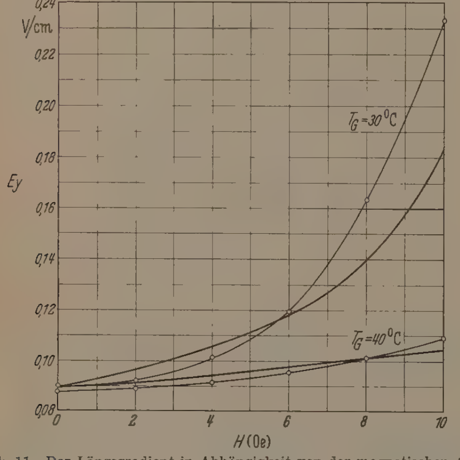


Abb. 11. Der Längsgradient in Abhängigkeit von der magnetischen Querfeldstärke bei $I_A = 300$ A; $T_G = 30°$ C; 40° C (——— berechneter Verlauf, o—o Meßwerte)

minderung der Elektronenbeweglichkeit um 36% bzw. 40%. Die Übereinstimmung mit den Meßwerten (Abb. 6) ist daher gut. Die Änderung der Elektronenbeweglichkeit muß sich in einer Verminderung der Einwirkung des magnetischen Querfeldes als auch des magnetischen Eigenfeldes bemerkbar machen. Der Einfluß des magnetischen Querfeldes ist durch die Maximaverschiebungen x^* gegeben, deren gemessene und nach Gl. (18) berechnete Werte in Tabelle 2 verglichen sind. Die Berechnung wurde unter Zugrundelegung einer um 40% verminderten Elektronenbeweglichkeit vorgenommen. Aus dem Vergleich in Tabelle 2 ist zu entnehmen, daß die Verminderung der Elektronenbeweglichkeit sich tatsächlich in einer verminderten Einwirkung des magnetischen Querfeldes auf die Trägerdichteverteilung deutlich bemerkbar macht und die Gvosdover-Beziehung gut bestätigt wird. Die Übereinstimmung bei beiden Gasdichten ist gut, wie aus dem Verhältnis a/a^* zu ersehen ist, wobei a^* derjenige a-Wert ist, der zu dem gemessenen x^*-Wert führt.

Die Einwirkung des magnetischen Eigenfeldes auf eine positive Säule ergibt eine Einschnürung der Trägerdichteverteilung zur Säulenmitte, wie sie Fetz [19] gemessen hat. Dieser Einschnürungseffekt fehlt bei den gemessenen Trägerverteilungen (Abb. 10). Das ist ebenfalls mit einer Verminderung der Elektronenbeweglichkeit zu erklären. Berechnet man nach Tonks [5] und Wasserrab [6] die dimensionslose Kenngröße LI_0, die ein Maß für den Einschnürungseffekt der positiven Säule darstellt, aus:

$$LI_0 = b_i b_e \mu_0 E_y I_A / 4\pi D_a = b_e \mu_0 E_y I_A / 4\pi U_e, \quad (46)$$

so ergibt sich für $I_A = 300$ A und $T_G = 30°$ C mit Berücksichtigung der verminderten Elektronenbeweglichkeit $LI_0 = 1{,}02$. Dieser Wert müßte nach [5] und [6] einen nur sehr schwachen Einschnürungseffekt ergeben, während mit dem unverminderten Beweglichkeitswert, $LI_0 = 2{,}04$, bereits der kritische Wert $LI_0 = 2$ überschritten ist, bei dem theoretisch eine unendlich hohe Trägerdichte in der Mitte der Entladung verlangt wird und daher Selbstabschnürung eintritt.

Mit einer Verminderung der Elektronenbeweglichkeit um 50%, entsprechend der Messung, wurde die Elektronentemperatur (Tabelle 2) und der Längsgradient für $I_A = 300$ A und $T_G = 30°$ C und 40° C berechnet. Abb. 11 zeigt den Verlauf des berechneten Gradienten in Abhängigkeit vom magnetischen Querfeld und den Vergleich mit den Meßwerten.

Die Berücksichtigung der Elektronenbeweglichkeitsbeziehung von Gvosdover bei der Berechnung des Längsgradienten nach Ludwig hat zur Folge, daß der mit steigender Ladungsträgerdichte zunächst fallende Verlauf des Gradienten aufgehoben wird und in einen Anstieg übergeht. Damit kann grundsätzlich der experimentell beobachtete Anstieg des Gradienten der positiven Säule in Abhängigkeit vom Anodenstrom erklärt werden.

Zusammenfassung

Es wird die Theorie der zylindrischen positiven Niederdrucksäule im schwachen, homogenen magnetischen Querfeld in Erweiterung der Diffusionstheorie der ungestörten positiven Säule nach Schottky behandelt. Die Gleichung für die sich unter der Einwirkung des Magnetfeldes einstellende Ladungsträgerdichteverteilung über den Entladungsquerschnitt mit einer Korrektur, die die Trägerdichte an der Wand berücksichtigt, wird abgeleitet. Desgleichen werden Beziehungen für den Ort und die Höhe des Trägerdichtemaximums im Querschnitt der positiven Säule in Abhängigkeit von der magnetischen Querfeldstärke angegeben. Mit diesen Ergebnissen und der Bestimmung der durch die Einwirkung des Magnetfeldes zusätzlich auftretenden Verluste an Ladungsträgern und metastabil angeregten Gasatomen kann dann die von Ludwig angegebene Theorie der positiven Niederdrucksäule erweitert und die Elektronentemperatur und der Längsgradient abhängig von der magnetischen Querfelstärke berechnet werden. Die zur Überprüfung der theoretischen Ergebnisse verwendete Versuchseinrichtung wird beschrieben. Der Vergleich der Meßreihen mit den theoretisch berechneten Werten ergibt eine gute Übereinstimmung. Abschließend wird die Stromabhängigkeit der Einwirkung des magnetischen

…uerfeldes auf die positive Säule untersucht. Es wird gefunden, daß im Bereich höherer Ladungsträgerdichte zur Übereinstimmung der Theorie mit den Meßergebnissen zu erreichen ist, wenn eine Verminderung der Elektronenbeweglichkeit in der Größenordnung, wie sie sich aus der von GVOSDOVER angegebenen Beziehung berechnen läßt, angenommen wird. Diese Verminderung der Elektronenbeweglichkeit mit wachsender Ladungsträgerdichte wird ebenfalls durch Messung und auf Grund einer verminderten Einwirkung des magnetischen Eigenfeldes auf die Trägerdichteverteilung der positiven Säule bestätigt.

Herrn Direktor G. DOBKE und Herrn Professor Dr. A. PARTZSCH danke ich für ihr stetes Interesse an der Arbeit.

Liste der Bezeichnungen

a^*	der a-Wert, der dem gemessenen x^*-Wert entspricht;
a, b	definiert durch Gl. (13);
$\beta_{0\mu}$	auf die Besetzungswahrscheinlichkeiten bezogene Stoßwahrscheinlichkeit nach [9];
$b_e; b_i$	Elektronen- und Ionenbeweglichkeit, Index 1 für $n = n_1$, Index H definiert durch Gl. (6);
b_{e0}	Konstante der Elektronenbeweglichkeit, Gl. (42);
D_a	ambipolare Diffusionskonstante, Gl. (8);
D_{AH}	definiert durch Gl. (8);
$D_e; D_i; D_m$	Diffusionskonstante der Elektronen, Ionen bzw. Metastabilen, Index H definiert durch Gl. (4);
E_y	elektrischer Längsgradient;
e	Elementarladung $1{,}601 \cdot 10^{-19}$ C;
H	magnetische Feldstärke;
$h_e; h_i$	definiert durch Gl. (3) und (5);
I_A	Anodenstrom;
j_{es}/j_{is}	Verhältnis von Elektronen- zu Ionensättigungsstrom zur Wand;
k	Boltzmann-Konstante $1{,}380 \cdot 10^{-23}$ Ws/grad;
m_e	Masse des Elektrons;
n	Gasdichte, Teilchen je Raumeinheit, $n = n_1 \cdot p$;
n_1	Gasdichte für $p = 1$, $n_1 = 3{,}54 \cdot 10^{16}$ Teilchen/cm³ Torr;
$n_e; n_i$	Anzahl der Elektronen bzw. Ionen je Raumeinheit, Index w heißt Wandnähe;
n_{e0}	gleich n_e an der Stelle x^* des Trägerdichtemaximums;
n_m	Anzahl der Metastabilen je Raumeinheit;
p	auf 0° C reduzierter Druck, $p = n/n_1$;
q	definiert durch Gl. (24);
R	Radius der positiven Säule;
$s_e; s_i; s_m$	Strömungsdichten der Elektronen, Ionen bzw. Metastabilen, Index x; y; z; r entspricht der Koordinatenrichtung, Index w heißt Wandnähe;
$s_{\mu\nu}$	Wahrscheinlichkeit eines Elektronenstoßes mit Übergang vom μ. zum ν. Anregungszustand;
T_e	Elektronentemperatur in °K;
$U_{\mu\nu}$	Differenz zwischen den Anregungsspannungen des μ. und ν. Zustandes;
$U_e; U_i$	Elektronen- bzw. Ionentemperatur im Voltäquivalent 11600° K entsprechen 1 V;
U_k	Voltäquivalent der kinetischen Energie, die ein Ladungsträgerpaar beim Auftreffen auf die Wand abgibt;
$\bar{v}$	arithmetischer Mittelwert der Elektronengeschwindigkeit bei Maxwell-Verteilung;
v_w	wahrscheinlichster Wert der Elektronengeschwindigkeit bei Maxwell-Verteilung;
x	$= \bar{n}_e/n$ arithmetischer Mittelwert des Ionisierungsgrades, Index 0 bei $H = 0$;
Z	Zustandssumme;
$\alpha; \beta$	definiert durch Gl. (12);
$\alpha_e; \alpha_i$	Konstante der Langevinschen Beweglichkeitsgleichung [Gl. (3) und (5)];
μ_0	Induktionskonstante $1{,}256 \cdot 10^{-8}$ Vs/A cm;
λ_1	1. Nullstelle des Bessel-Funktion J_0;
ϱ	Wandkorrekturfaktor, Index m für die Metastabilen, Gl. (15);
σ	definiert durch Gl. (36);
τ	mittlere Lebensdauer der Ladungsträger, Index 0 für $H = 0$;
τ_1	mittlere Lebensdauer der Metastabilen, Index 0 für $H = 0$;
χ	definiert durch Gl. (38);
ψ	definiert durch Gl. (27);
ω_1	Besetzung des metastabilen Zustandes im thermischen Gleichgewicht.

Literatur: [1] LORENTZ, H. A.: The Theory of Electrons. London 1912. — [2] MORSE, P. M., W. P. ALLIS and E. S. LAMAR: Phys. Rev. **48**, 412 (1935). — [3] ALLIS, W. P., and H. W. ALLEN: Phys. Rev. **52**, 703 (1937). — [4] TONKS, L., and W. P. ALLIS: Phys. Rev. **52**, 710 (1937). — [5] TONKS, L.: Phys. Rev. **56**, 360 (1939). — [6] WASSERRAB, TH.: Z. Naturforsch. **2a**, 575—582 (1947). — [7] SCHOTTKY, W.: Phys. Z. **25**, 343, 435 (1924). — [8] SPENKE, E.: Z. Physik **127**, 221 (1950). — [9] LUDWIG, E. H.: Z. angew. Phys. **5**, 377, 421 (1953). — [10] SOMMERFELD, A.: Vorlesungen über theoretische Physik, Bd. VI. Leipzig 1945. — [11] JAHNKE-EMDE: Tafeln höherer Funktionen. Leipzig 1951. — [12] KLARFELD, B.: Techn. Phys. USSR. **4**, 44 (1937); **5**, 913 (1938). — [13] DOSSE, I., u. G. MIERDEL: Der elektrische Strom im Hochvakuum und in Gasen. Leipzig 1943. — [14] GVOSDOVER, S. D.: Phys. Z. Sowjet. **12**, 164 (1937). — [15] WEIZEL, W., u. R. ROMPE: Theorie elektrischer Lichtbögen und Funken. Leipzig 1949. — [16] ROMPE, R., u. M. STEENBECK: Ergebn. exakt. Naturw. **18** (1939). — [17] LANGMUIR, I., and H. MOTT-SMITH: Phys. Rev. **28**, 727 (1926). — [18] SPIWAK, G., i E. REICHRUDEL: Sow. Phys. **9**, 655 (1936). — [19] FETZ, H.: Ann. d. Phys. **40**, 579 (1941).

Dr. MAX DANDERS,
Physikalisches Laboratorium der
AEG Stromrichterfabrik Berlin

Anwendung der Röntgenkleinwinkelstreuung zur Untersuchung technischer Präparate

Von HEINRICH KNAPP

Mit 9 Textabbildungen

(Eingegangen am 4. Februar 1957)

1. Einleitung

Die Röntgenkleinwinkelstreuung wurde seit ihrer Entdeckung vor etwa 25 Jahren häufig angewandt zur Untersuchung kolloidaler und makromolekularer Strukturen. Sie bildet eine wertvolle Ergänzung zum Elektronenmikroskop, da ihr gerade Dimensionen, die an der Auflösungsgrenze des Elektronenmikroskops liegen, besonders zugänglich sind. Zusammenfassende Darstellungen über Untersuchungen an Solen, Gelen, Katalysatoren, Faserstoffen, Makromolekülen in Lösung usw., finden sich z.B. bei HOSEMANN [1] und KRATKY [2], nebst den zugehörigen Auswerteverfahren. Trotz den Erfolgen in der Grundlagenforschung hat die Kleinwinkelstreuung aber noch wenig allgemeine Anwendung gefunden. Der Grund dafür dürfte in folgendem zu suchen sein: Zum ersten ist es sehr schwer, den Röntgenstrahl genügend fein auszublenden. Die Streustrahlung muß auf wenige Winkelminuten an den Primärstrahl heran vermessen werden können, wenn man hinreichende Auflösung erzielen

will. Die Auflösung wird dabei üblicherweise vermöge der Braggschen Beziehung als der größte noch meßbare Netzebenenabstand angegeben. Erst in neuerer Zeit ist es mit einer von O. Kratky [3], [4], [5] ersonnenen Kamera möglich, eine sehr hohe Auflösung auf einfache Weise zu erreichen. Die zweite Schwierigkeit liegt in der Auswertung der Streukurven. Wohl ist das Problem für kugelige kolloide Teilchen in Lösung bereits seit 1938 durch Guinier geklärt, auch gibt es in zahlreichen Arbeiten von Kratky, Porod, Hosemann, Shull und Roess u. a. Erweiterungen der Auswertemöglichkeiten hinsichtlich Bestimmung der Teilchenform, Teilchengrößenstatistik, Berücksichtigung der dichteren Packung usw., aber es gibt noch kein allgemein anerkanntes Auswerteverfahren für sehr unregelmäßige Strukturen, wie sie z. B. in Pulvern, Sinterkörpern, Gelen usw. vorliegen. 1951 hat jedoch

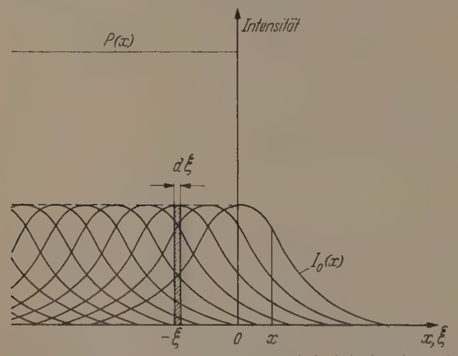


Abb. 1. Zur Entstehung der Verschmierung bei stufenförmig verteilter Primärintensität

Porod [6] eine Theorie veröffentlicht, die ohne weitere Voraussetzungen folgende Aussagen über jedes kolloiddisperse System erlaubt: 1. Die Bestimmung der inneren Oberfläche, 2. die Bestimmung eines sog. Formfaktors, der charakterisiert, ob das System kugelige, körnige, faserige bzw. blättrige Struktur aufweist, 3. die Bestimmung der sog. Kohärenzlänge, die in geeigneten Systemen eine Aussage über die Teilchengröße zuläßt. Diese Theorie wird von Hosemann [7] kritisiert, jedoch zeigt eine experimentelle Nachprüfung von Kahovec, Porod und Ruck [8], daß sie brauchbare Ergebnisse liefert[1].

Ohne auf die theoretischen Auseinandersetzungen einzugehen, wird in der vorliegenden Arbeit die Porodsche Auswertemethode zugrunde gelegt. Es wird zunächst gezeigt, wie man durch stufenförmige Ausblendung des Primärstrahls anstatt der üblichen strichförmigen eine wesentliche Vereinfachung des Porodschen Auswerteverfahrens erzielen kann. Dadurch wird gleichzeitig die Absolutgenauigkeit der Ergebnisse verbessert, da die Entschmierung der Streukurven, die sonst sehr mühsam, wenn nicht unmöglich ist, mitberücksichtigt ist. Dies hat besonders Bedeutung für technische Präparate, deren Dimensionen oft an der Grenze des Auflösungsvermögens liegen. In einem folgenden Abschnitt wird gezeigt, wie sich die erforderliche stufenförmige Intensitätsverteilung durch eine kleine Abänderung der Kratkyschen Kamera realisieren läßt. Die Fehler, die durch die nichtidealen experimentellen Gegebenheiten entstehen, werden abgeschätzt. In einem letzten Abschnitt werden einige Meßergebnisse an technischen Präparaten als Beispiele angegeben.

2. *Prinzip der Methode*

Wie in einer früheren Arbeit [9] bereits kurz mitgeteilt wurde, erhält man eine theoretisch besonders einfache Entschmierung bzw. man spart eine Integration für jedes integrierende Auswerteverfahren, wenn es gelingt, eine stufenförmige Intensitätsverteilung mit scharfer Kante herzustellen. In Abb. 1 ist $P(x)$ die Primärintensität mit einer Kante beim Winkel $x = 0$, die zunächst als ideal vorausgesetzt sei. Die eingezeichneten Kurven $I_0(x)$ seien die Streukurven, wie sie von einem idealen spaltbegrenzten Bündel erzeugt werden. Wie Abb. 1 zeigt, ist dann der Beitrag der unter dem Winkel $-\xi$ ausgestrahlten Primärintensität zur Kleinwinkelstreuung beim Winkel x:

$$c \cdot d\xi \cdot I_0(x-\xi).$$

Die gesamte, verschmierte Streuintensität an der Stelle x ist die Summe über diese Anteile:

$$I(x) = c \int_{-\infty}^{0} I_0(x-\xi)\, d\xi = c \int_{x}^{\infty} I_0(y)\, dy. \qquad \text{(1a)}$$

Durch Differentiation folgt hieraus sofort

$$I_0(x) = -\frac{1}{c} I'(x). \qquad \text{(1b)}$$

Man erhält also die gesuchte entschmierte Streukurve durch einfache graphische Differentiation der stufenförmig verschmierten Streukurve. Dies würde nun in praktischer Hinsicht kaum einen Erfolg bedeuten, denn die graphische Differentiation wäre viel zu ungenau. Verwendet man jedoch ein integrierendes Auswerteverfahren, wie es die Porodsche Methode darstellt, so ist die Differentiation nicht nötig. Man kann die Integrale gleich in den Werten der verschmierten Kurve ausdrücken und spart damit eine Integration. Selbstverständlich sind mit dieser Methode keine differenzierten Aussagen, wie sie gelegentlich Maxima der Kleinwinkelstreukurven ergeben, zu erhalten. Bei sehr allgemeinen Strukturen treten diese aber auch nicht auf und das wertvolle des Porodschen Verfahrens sind gerade die mittelnden Aussagen.

Porod zeigt, daß die Bestimmung der oben angeführten Eigenschaften eines kolloid-dispersen Systems auf die Bestimmung folgender Größen aus der Streukurve $I_0(x)$ zurückgeführt werden kann, wenn man strichförmige Ausblendung des Primärstrahls zugrunde legt:

$$E = \int_0^\infty I_0\, dx, \qquad (2)$$

$$Q = \int_0^\infty x I_0\, dx, \qquad (3)$$

$$A = \lim_{x\to\infty} I_0 x^3. \qquad (4)$$

E bedeutet die Fläche unter der Streukurve $I_0(x)$, wobei der Verlauf zum Streuwinkel 0 in geeigneter Weise zu extrapolieren ist. Q, die Fläche unter der mit x multiplizierten Streukurve, wird von Porod als Normierungsgröße verwendet, denn er kann zeigen,

[1] *Anmerkung bei der Korrektur.* In einer kürzlich erschienenen Arbeit [Z. Elektrochem. **60**, 405 (1956)] konnte V. Gerold nachweisen, daß die Theorie von Porod richtig und mit der von Hosemann identisch ist.

daß sie eine Invariante des dispersen Systems ist und von Änderungen durch Deformation, Aggregation oder Aufspaltung der Teilchen unabhängig ist. Wie Porod weiter zeigt, klingt jede Streukurve bei großen Winkeln proportional der Funktion $1/x^3$ ab, was durch die Experimente von Kahovec, Porod und Ruck [8] tatsächlich weitgehend bestätigt wird. Die Größe A ist also ein Maß dafür, ob dieser Auslauf bei größeren oder bei kleineren Streuwinkeln liegt. Mit diesen Größen findet Porod

für die spezifische innere Oberfläche
$$O_r = 4 p w' \cdot \frac{A}{Q}, \tag{5}$$

für die Kohärenzlänge
$$l_c = \frac{2}{p} \cdot \frac{E}{Q}, \tag{6}$$

für den Formfaktor
$$f = \frac{A \cdot E}{Q^2}, \tag{7}$$

wo w' den Volumanteil des Dispersionsmittels bedeutet und $p = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{\Theta_0}{x_0}$ einen Umrechnungsfaktor, der die Umrechnung eines Streuwinkels Θ_0 auf die bequemer zu messende Verschiebung x_0 gestattet (λ = Wellenlänge der Röntgenstrahlung).

Setzt man nun Gl. (1b) in die Gln. (2) bis (4) ein, so erhält man für E und A direkt und für Q durch partielle Integration

$$E = I(0), \tag{8}$$

$$Q = \int_0^\infty I\, dx, \tag{9}$$

$$A = \lim_{x \to \infty} 2 I x^2. \tag{10}$$

Hierbei wurde der Faktor $1/c$ jeweils weggelassen, da in den Endformeln (5) bis (7) nur die Verhältnisse E/Q bzw. A/Q vorkommen.

Außer der Berücksichtigung der Verschmierung bedeuten die Gln. (8) und (9) noch eine wesentliche Vereinfachung gegenüber den entsprechenden Gln. (2) und (3). Die Integration für die Größe E wird durch die Ablesung der extrapolierten Streuintensität beim Winkel 0 ersetzt. Dabei wird besonders die Extrapolation wesentlich vereinfacht. Denn bei strichförmig ausgeblendetem Primärstrahl wird man im allgemeinen nach einer Glockenkurve zum Streuwinkel 0 extrapolieren. Dies bedeutet die umständliche Zeichenarbeit einer $\log I$-, x^2-Darstellung. Bei der stufenförmig verteilten Primärintensität ist dies für die Mehrzahl der Fälle zu ersetzen durch eine einfache lineare Verlängerung der gemessenen Streukurve bis zur Kante. Denn die Integration über die Glockenkurven der Abb. 1 ergibt eine zur Kante symmetrische Kurve mit einer Wendetangente beim Durchgang durch die Kante. In der Praxis ist diese Wendetangente natürlich nicht zu vermessen, denn die Fortsetzung der Kurve im Primärgebiet hängt vom Streuvermögen und von der Absorption des Präparates ab.

Die Vereinfachung für die Bestimmung der Größe Q besteht darin, daß die Multiplikation der Streukurve mit x wegfällt und statt dessen die Fläche unter der extrapolierten Streukurve direkt ausplanimetriert werden kann. Man unterteilt die Fläche dabei zweckmäßig bei einem gewissen x_g, für das der von Gl. (10) verlangte Auslauf proportional $1/x^2$ bereits erreicht ist und bestimmt den rechts von x_g liegenden Flächenanteil durch Rechnung. Diesen Anteil Q_2 findet man aus der ohnehin zu bestimmenden Größe A der Gl. (10) vermöge $Q_2 = A/2 x_g$.

3. Experimentelles

Die erforderliche stufenförmige Intensitätsverteilung erreicht man mit der Kratkyschen Kamera [3], [4], [5] unter gleichzeitiger Verwendung eines fokussierenden Monochromatorkristalls nach Johansson. Die Kratkysche Kamera besteht entsprechend Abb. 2a aus drei in einer Ebene liegenden Flächen F_1, F_2, F_3,

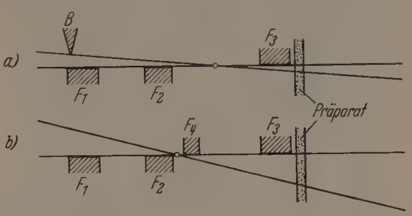


Abb. 2a u. b. a Strahlengang bei der Kratkyschen Kamera; b Strahlengang bei der abgeänderten Kamera zur Erzeugung der stufenförmig verteilten Primärintensität

die eine scharfe Begrenzung des Primärstrahls nach oben ergeben, da keine störende Streustrahlung, wie sie an den üblichen Blenden immer entsteht, um die Fläche F_3 herum nach oben gelangen kann. Kratky legt die Fokallinie des Monochromators in die Mitte zwischen die Flächen F_2 und F_3 und begrenzt den Primärstrahl nach der anderen Seite durch die Blende B. Man erhält dann eine Verteilung der Primärintensität entsprechend der Kurve a in Abb. 3 mit einem scharfen Kantenabfall über etwa 2 Winkelminuten und einer weniger scharfen Rückseite. Will man nun eine stufenförmige Intensitätsverteilung, so genügt es im allgemeinen nicht, lediglich die Blende B wegzulassen, denn selbst bei bester Beschaffenheit von Röhre und Kristall ist die Fokallinie nicht so scharf, daß keine Abrundung der Kante eintritt. Vielmehr ergibt sich

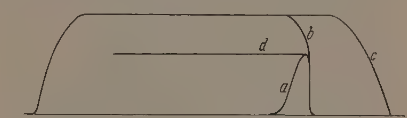


Abb. 3. Zur Entstehung stufenförmig verteilter Primärintensität mit scharfer Kante

die Kurve b der Abb. 3. Man sieht, daß die volle Primärintensität, wie sie vom Kristall kommt und durch Kurve c dargestellt wird, erst in größerer Entfernung erreicht wird. Um diese störende Abrundung zu vermeiden, ist es naheliegend, die Breite der Fokallinie mechanisch zu begrenzen. Man macht dies zweckmäßig so, daß man nach Abb. 2b die Fokallinie dicht hinter die Fläche F_2 legt und von oben her durch die Fläche F_4 begrenzt. Diese sitzt nach unseren Erfahrungen am besten einige Millimeter hinter der Fläche F_2 und $^2/_{100}$ bis $^3/_{100}$ mm darüber. Weitere Verengung bringt keine Verbesserung mehr. Kurve d in Abb. 3 zeigt, daß man jetzt die übliche Schärfe der Kratkyschen Kamera erhält.

Die Breite des an die Kante sich anschließenden Konstanzbereichs hängt vom verwendeten Kristallmonochromator und vor allem von dessen Justierung ab. Die Johansson-Kristalle ergeben im allgemeinen

Winkelöffnungen von 2°. Legt man die Kante entsprechend Abb. 3 an den Beginn des Konstanzbereichs des Kristalls, dann läßt sich hinter der Kamera ein Bereich guter Konstanz von über 1° leicht erreichen. Hat man weiter streuende Präparate, so kann man auf die normale Kratkysche Anordnung mit Spaltbegrenzung durch die Blende B zurückgehen, insbesondere, da dann die Entschmierung kaum mehr notwendig ist.

An Hand der Abb. 4 seien Einzelheiten der Apparatur kurz beschrieben. Als Röntgenröhre fand eine von Hosemann [10] entwickelte Feinfokus-Röhre mit Kobalt-Anode der Firma AEG Verwendung. Sie wurde

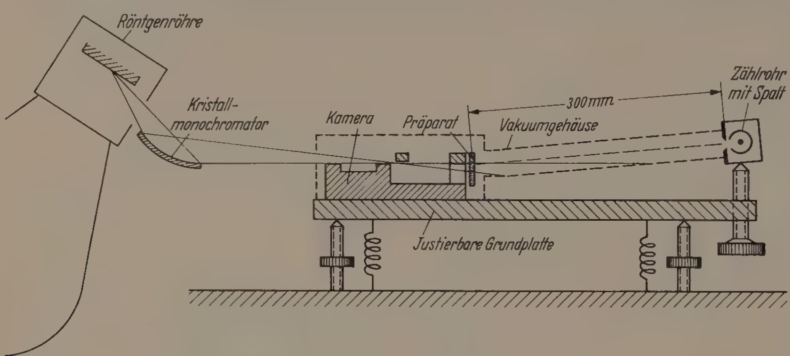


Abb. 4. Prinzipskizze der Röntgenkleinwinkelanlage

mit einer vollweggleichgerichteten Röntgenanlage der Firma Seiffert unter gut konstant gehaltenen elektrischen Bedingungen betrieben. Die Röhre wurde sehr stabil, aber verstellbar gehaltert. An der Röhre ist der Kristallmonochromator der Firma AEG, Bauart Jagodzinski [11] befestigt. Die Kamera ist auf einer Platte justierbar angeordnet. Das Zählrohr mit dem $^3/_{100}$ mm weiten Zählrohrspalt kann mit einer Mikrometerschraube verschoben werden. Es wird bei seiner

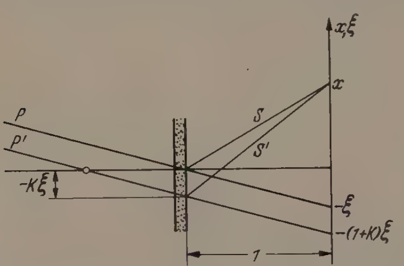


Abb. 5. Zum Einfluß der Entfernung des Präparates von der Fokallinie

Bewegung mittels entsprechender Stützen um eine durchs Präparat gehende Achse geschwenkt. Der Zählrohrspalt muß parallel zur Kamera justiert werden können. Deshalb ist er in den Stützen drehbar aufgehängt. Ein vakuumdichtes Gehäuse reicht vom Eintritt in die Kamera bis zum Zählrohrspalt. Ein Gummizwischenstück erlaubt die erforderlichen Bewegungen. Das Eintrittsfenster und der Zählrohrspalt sind mit dünnen Kunststoff-Folien bespannt. Als Zählrohr fand ein Interferenzzählrohr nach Trost [12] des Laboratoriums Prof. Berthold Verwendung. Dies erlaubt die nahezu fehlerfreie Messung hoher Stoßzahlen, wie sie im inneren Teil der Streukurve vorkommen. Zur Messung wurde das zugehörige integrierende Zählrohrgerät (Ratemeter) verwendet. Die niederen Stoßzahlen beim Auslauf der Streukurve wurden mit einem angeschlossenen mechanischen Zählwerk ausgezählt.

Die Justierung kann mit der beschriebenen Anordnung systematisch und rasch vorgenommen werden.

Die Anwendung von Vakuum bringt einmal einen Intensitätsgewinn durch Vermeidung der Luftabsorption um etwa den Faktor 2,5, sodann wird auch die Kante, insbesondere in ihrem unteren Auslauf verbessert.

Es seien nun einige Einflüsse der experimentellen Gegebenheiten auf die Entstehung von Fehlern diskutiert. Zunächst wird gezeigt, daß kein Fehler dadurch entsteht, daß die Fokallinie, wie Abb. 2 und 4 zeigt, etwa 8 cm vom Präparat entfernt liegt und nicht, wie in Abschnitt 2 stillschweigend angenommen, mit diesem zusammenfällt. In Abb. 5 sind die Verhältnisse dargestellt. Liegt die Fokallinie im Präparat, so trifft ein Primärstrahl P einen Bildschirm in der Entfernung 1 unter dem Winkel $-\xi$. Ein davon herrührender Streustrahl S möge den Bildschirm unter dem Winkel x treffen, so daß der Streuwinkel $x-\xi$ ist. Liegt die Fokallinie vom Präparat entfernt, so trifft ein Primärstrahl P', der dieselbe Richtung wie P hat, den Bildschirm im Punkt $-(1+K)\cdot\xi$. Dabei ist K eine von der Entfernung der Fokallinie abhängige Konstante. Damit ein Streustrahl S' den Bildschirm wieder in x trifft, muß der Streuwinkel $x-(1+K)\cdot\xi$ sein. Die gesamte gestreute Intensität ist demnach

$$I(x) = c\int_{-\infty}^{0} I_0(x-(1+K)\xi)\,d\xi = \frac{c}{1+K}\int_{x}^{\infty} I_0(y)\,dy.$$

Durch Vergleich mit Gl. (1a) erkennt man, daß sich die Versetzung des Präparats lediglich so auswirkt, wie wenn die Primärintensität um einen gewissen Betrag schwächer wäre. Natürlich muß das Präparat in dem vergrößerten durchstrahlten Bereich homogen sein.

Von großem Einfluß auf die Genauigkeit der Meßergebnisse ist die experimentell erzielbare Steilheit der Kante. Mit der Kratkyschen Kamera läßt sich erreichen, daß der Abfall etwa über einen Winkel von 2 Winkelminuten erfolgt. Dies entspricht für Cobaltstrahlung einem auflösbaren Netzebenenabstand von etwa 3000 Å. In technischen Präparaten kommen häufig größere Abstände vor. Trotzdem liefern die Präparate deutlich sich unterscheidende Streukurven und es erhebt sich die Frage, welche sinnvollen Aussagen man zur Charakterisierung der Unterschiede machen kann.

Bewährt hat sich folgendes Verfahren. Man ersetzt entsprechend Abb. 6 die experimentell gemessene

Kante durch eine ideale Ersatzkante, die von der gemessenen Kante flächengleiche Stücke abschneidet. Man kann zeigen, daß die Fehler dann am kleinsten werden. Die Größe A, die nur vom weit entfernt liegenden Auslauf der Streukurve beeinflußt wird, ergibt sich praktisch fehlerfrei. Die Größe Q erfährt durch die nichtideale Kante einen gewissen Fehler. Ersetzt man den experimentell gemessenen Kantenabfall durch eine schräge Gerade gemäß Abb. 6, so läßt sich nachweisen, daß die Größe Q durch die Schräge der Kante um einen Fehler von der Größenordnung

$$\frac{a^2}{24}\,|J'(0)|$$

zu groß bestimmt wird. Bei Strukturen, deren Dimensionen innerhalb des Auflösungsvermögens liegen, erreicht dieser Fehler die Größenordnung von 1%. Demnach ergibt sich die innere Oberfläche im Sinne der

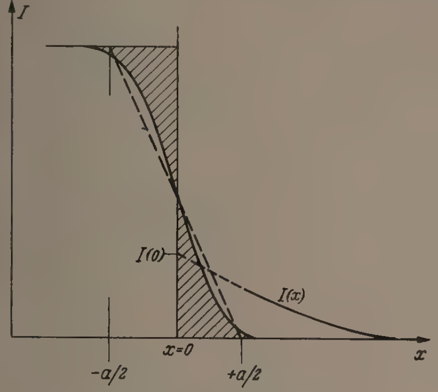


Abb. 6. Bestimmung der idealen Ersatzkante

Porodschen Theorie verhältnismäßig genau. Die Bestimmung der Größe E und damit der Kohärenzlänge und des Auflösungsvermögens ergibt theoretisch keinen Fehler, wenn man hinreichend gut innerhalb des Auflösungsvermögens bleibt. Wendet man die Methode jedoch entsprechend unserer Zielsetzung auch auf Strukturen an, in denen Abstände vorkommen, die über das Auflösungsvermögen hinausgehen, so ist die Krümmung der Kurve an der Grenze des Auflösungsvermögens so stark, daß die Extrapolation Schwierigkeiten macht. Experimentell kann man sich etwas weiter helfen, indem man die Zählrohrdifferenzmethode von Kahovec und Ruck [13] anwendet und den Einfluß des Kantenauslaufs abzieht, indem man das Präparat zur Erzielung gleicher Absorption vor die Kamera bringt. Die Methode darf jedoch nur für den letzten Auslauf der Kante angewandt werden, da sonst sekundäre Fehler entstehen. Eine gewisse Verbesserung bringt anstatt der einfachen linearen Extrapolation oft auch eine kubische Extrapolation, die die Krümmung der Kurve berücksichtigt und eine Wendetangente auf der idealen Ersatzkante besitzt.

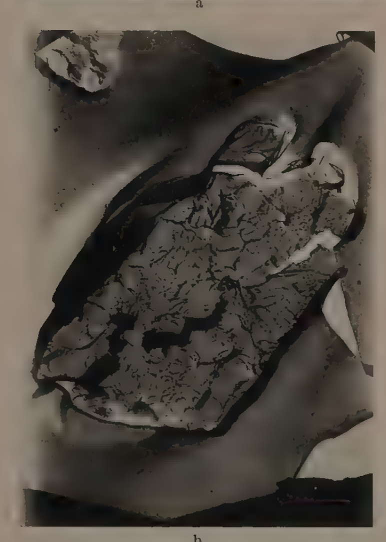
Die Extrapolation bedarf im einzelnen Fall einer sinnvollen Festsetzung. Man erhält dann aber charakteristische Angaben der Kohärenzlänge und des Formfaktors, die für technische Vergleichsmessungen sehr wertvoll sind. Bei zu groben Strukturen erscheinen die Kohärenzlängen durch das beschränkte Auflösungsvermögen zu klein, während die Absolutwerte der spez. Oberfläche nach zu großen Werten tendieren. Letzteres rührt davon her, daß die Größe Q durch das beschränkte Auflösungsvermögen zu klein bestimmt wird.

4. *Messungen*

Als Beispiele seien zunächst Untersuchungen an zwei technischen Tonerdepulvern dargestellt. Abb. 7a und b zeigen von E. Zehender [14] hergestellte



a



b

Abb. 7a u. b. Elektronenmikroskopaufnahmen zweier technischer Tonerden, Vergrößerung 5000fach. a Korund; b niederkalzinierte Tonerde

Elektronenmikroskopaufnahmen von Korundpulver und von einer bei niederer Temperatur kalzinierten Tonerde, die eben ihr Kristallwasser verloren hat, jedoch noch nicht in sich zusammengesintert ist. Man kann die körnige Struktur der ersteren und die narbige, zerklüftete der zweiten deutlich unterscheiden. Die Pulver wurden in bestimmter Konzentration in Paraffin suspendiert und zu Scheiben von $^3/_{10}$ mm Dicke gepreßt. Die gemessenen Streukurven zeigt

Abb. 8 in doppelt logarithmischer Darstellung. Man erkennt, wie gut die Steigung −2 beim Auslauf der Kurven in beiden Fällen erreicht wird und wie weit die niederkalzinierte Tonerde im Vergleich zum Korund streut. In Tabelle 1 sind die Ergebnisse verschiedener Meßmethoden für diese Pulver zusammengestellt.

Man erkennt, daß die mit der Kleinwinkelmethode bestimmten Oberflächen höher liegen als die mit den sonstigen Methoden gemessenen. Von diesen wird die Methode der Gasadsorption nach BRUNNAUER, EMMETT und TELLER (BET) am meisten anerkannt. Es

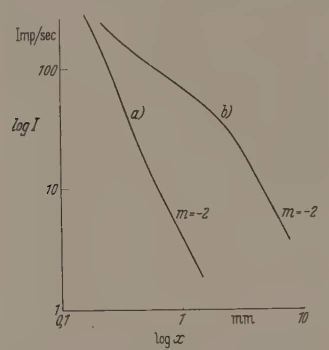


Abb. 8. Streukurven des Korunds (*a*) und der niederkalzinierten Tonerde (*b*) in doppeltlogarithmischer Darstellung

kann nicht entschieden werden, ob die Abweichung vom Auswerteverfahren der Kleinwinkelstreuung abhängt oder ob mit der Röntgenmethode innere Oberflächen erfaßt werden, die anderen Methoden nicht zugänglich sind. Auffallend ist der hohe Formfaktor der niedergebrannten Tonerde. Der Formfaktor wird nach der Porodschen Festsetzung groß, wenn eine

Tabelle 1. *Meßergebnisse der Röntgenkleinwinkelstreuung zweier Tonerdepulver und Vergleich der spezifischen inneren Oberflächen mit den Methoden der Gasdurchlässigkeit für Knudsen-Strömung* [15] *und der Gasadsorption nach BET*

	Spezifische innere Oberfläche O_r (m²/cm³)			Kohärenzlänge (Å)	Formfaktor
	Gasdurchlässigkeit Knudsen-Strömung [15]	Gasadsorption BET	Röntgenkleinwinkelstreuung		
Korund	7,3	4,0	17,5	1630	0,56
Niederkalzinierte Tonerde . . .	167	182	310	510	2,8

große Oberfläche trotz großer Gesamtteilchengröße (genauer Kohärenzlänge) entsteht, also z.B. bei stäbchen- oder blättchenförmigen Teilchen. Im vorliegenden Fall entsteht der hohe Formfaktor dadurch, daß die relativ groben Partikel eine feine Gliederung ihrer Oberfläche durch Narben und Spalte erfahren.

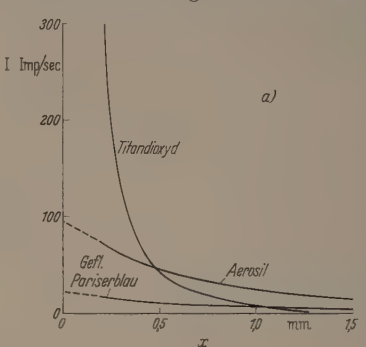
Interessant für die Beurteilung der Angaben, die mit obigem Verfahren zu gewinnen sind, ist folgender Versuch. Korundpulver wurde in verschiedener Konzentration in Paraffin dispergiert und die Kleinwinkelstreuung in Abhängigkeit vom Volumanteil w' des Paraffins untersucht. Tabelle 2 gibt die Ergebnisse.

Während sich die innere Oberfläche bezogen auf 1 cm³ kompakter Substanz wenig ändert, ändert sich die Kohärenzlänge und der Formfaktor stärker. und

Tabelle 2. *Abhängigkeit der aus der Röntgenkleinwinkelstreuung zu gewinnenden Werte von der Packungsdichte*

w'	l_c (Å)	f	O_r (m²/cm³)
0,4	1180	0,61	16,5
0,5	1370	0,58	17,0
0,6	1470	0,55	18,0
0,7	1540	0,50	18,2
0,8	1640	0,47	18,4

zwar wird der Formfaktor mit kleinerem w', also dichterer Packung, größer. Dies rührt daher, daß die Gesamtpartikel zum größten Teil nicht mehr aufgelöst werden und statt dessen die Mikrostruktur ihrer Oberfläche und die Abstände zwischen ihnen streuen. Deshalb wird die Kohärenzlänge beim Zusammenrücken



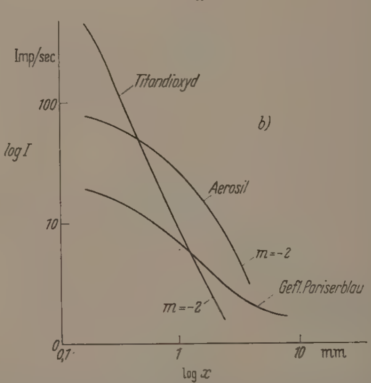


Abb. 9. Streukurven von Kunstharzlackfolien mit den Pigmenten Titandioxyd, Aerosil, geflushtes Pariserblau in *a* linearer, *b* doppeltlogarithmischer Darstellung

kleiner. Der Formfaktor wird größer, wie es der feineren Gliederung der Zwischenräume beim Zusammenrücken der Partikel entspricht. Bei Vergleichsuntersuchungen derartiger Pulver ist also der Volumanteil konstant zu halten. Der Formfaktor wird in Tabelle 2 kleiner als 0,5, obwohl dies nach der Porodschen Festsetzung nicht sein kann. Dies rührt daher, daß bei der Auswertung der Einfachheit halber lediglich die lineare Extrapolation angewandt wurde. Verwendet man statt dessen die angedeutete kubische Extrapolation, so verschwindet diese Diskrepanz.

Als weiteres Beispiel seien Messungen an Lackfolien dargestellt, die aus derselben Lackgrundlage bestanden, jedoch verschiedene Pigmente enthielten. Die Abb. 9a und b zeigen die Streukurven von Lackfolien mit Titandioxyd, Aerosil und geflushtem Pariserblau als Pigment in normaler und logarithmischer

Darstellung. Titandioxyd und Aerosil zeigen gut den Auslauf der Streukurve mit der Steigung —2. Titandioxyd zeigt wegen seines hohen Elektronendichteunterschieds gegen die Lackgrundlage eine kräftige Kleinwinkelstreuung, die rasch abklingt, da es sich um relativ grobe Partikel handelt. Aerosil, ein sehr feines Quarzpulver, hebt sich in der Elektronendichte weniger aus der Lackgrundlage heraus. Die Streuung ist deshalb weniger intensiv, reicht aber wegen der Feinheit weit hinaus. Beide Pigmente liefern etwa dieselben Größen, wie sie es als freie Pulver tun.

Ganz anders verhält sich das geflushte Pariserblau. Obwohl seine mittlere Elektronendichte etwa gleich hoch liegt wie die des Aerosils, ist die Kleinwinkelstreuung erheblich weniger intensiv. Der Auslauf mit der Steigung —2 wird nicht erreicht. KAHOVEC, POROD und RUCK [8] beobachteten diese Erscheinung an einigen Gelen. Man kann sie Systemen mit nicht definierter innerer Oberfläche zuschreiben. Vom geflushten Pariserblau ist tatsächlich anderweitig bekannt, daß es sich im Lack in einem Zwischenzustand zwischen kolloidaler und chemischer Lösung befindet. Aus diesem Grunde wird auch der wirksame Elektronendichteunterschied vermindert und die Kleinwinkelstreuung weniger intensiv.

Zusammenfassung

Es wird eine Abänderung der Kratkyschen Kleinwinkelkamera beschrieben, die es erlaubt, eine stufenförmig verteilte Primärintensität mit scharfer Kante herzustellen. Die von dieser Kante aus gemessene Kleinwinkelstreuung ergibt eine Vereinfachung des Auswerteverfahrens von POROD unter gleichzeitiger Berücksichtigung der Verschmierung des Primärstrahls. Möglichkeiten der Anwendung der Methode auf Strukturen, die nicht vollständig innerhalb des Auflösungsvermögens liegen, werden diskutiert. Als Beispiele werden Messungen an technischen Tonerdepulvern und Lackpigmenten dargestellt.

Besonderen Dank schulde ich Herrn Dipl. math. R. LANG für die Ausführung von Fehlerabschätzungen und für wertvolle Diskussionen. Herrn Dr. E. ZEHENDER danke ich für die Herstellung von Elektronenmikroskopaufnahmen.

Literatur: [1] HOSEMANN, R.: Erg. exakt. Naturwiss. **24**, 142 (1951). — [2] KRATKY, O.: Naturwiss. **42**, 237 (1955). — Z. Elektrochem. **60**, 245 (1956). — [3] KRATKY, O.: Z. Elektrochem. **58**, 49 (1954). — [4] KRATKY, O., u. A. SEKORA: Mh. Chem. **85**, 660 (1954). — [5] KRATKY, O.: Kolloid-Z. **144**, 110 (1955). — [6] POROD, G.: Kolloid-Z. **124**, 83 (1951); **125**, 51 (1952). — [7] HOSEMANN, R.: Z. Elektrochem. **58**, 271 (1954). [8] KAHOVEC, L., G. POROD u. H. RUCK: Kolloid-Z. **133**, 16 (1953). — [9] KNAPP, H.: Kolloid-Z. **142**, 163 (1955). — [10] HOSEMANN, R.: Z. angew. Phys. **7**, 532 (1955). — [11] HOFMANN, E.G., u. H. JAGODZINSKI: Z. Metallkde. **46**, 601 (1955). — [12] TROST, A.: Z. angew. Phys. **2**, 286 (1950). — [13] KAHOVEC, L., u. H. RUCK: Z. Elektrochem. **57**, 859 (1954). — [14] ZEHENDER, E.: Z. wiss. Mikrosk. (erscheint demnächst). — [15] KRAUS, G., J.W. ROSS and L.A. GIRIFALCO: J. Phys. Chem. **57**, 330 (1953).

Dr. H. KNAPP,
Physikalisches Laboratorium
der Robert Bosch GmbH., Stuttgart

Die Bestimmung der Permeabilität ferromagnetischer Stoffe aus der thermischen Rauschspannung von Spulen

Von WALTER NONNENMACHER und LUTZ SCHWEIZER

Mit 8 Textabbildungen

(Eingegangen am 22. Januar 1957)

1. Einleitung

Permeabilitätsmessungen werden meist so durchgeführt, daß man eine Ringkernprobe mit Draht bewickelt und den Scheinwiderstand dieser Spule in der Wechselstrommeßbrücke bestimmt. Aus dem komplexen Scheinwiderstand der Spule läßt sich dann die ebenfalls komplexe Permeabilität des Ringkernmaterials berechnen. Wegen Wirbelströmen im Kern oder wegen verschiedenartiger magnetischer Nachwirkungen ist die Permeabilität eine Funktion der Meßfrequenz. Wegen der bekannten Hysterese ist sie zudem abhängig von der bei der Messung benützten Wechselfeldstärke. Zur Klärung der physikalischen Vorgänge hat man Interesse daran, die Einflüsse von Frequenz und Amplitude sauber voneinander zu trennen.

Wenn man zur Messung in der Brücke sehr kleine Wechselfeldstärken von der Größenordnung 1 mA/cm benützt, läßt sich die Hysterese weitgehend vermeiden, und man erhält praktisch amplitudenunabhängige Permeabilitätswerte. Besonders bei hochpermeablen Materialien ist jedoch auch im Gebiet so kleiner Feldstärken noch eine nennenswerte Amplitudenabhängigkeit der Permeabilität zu finden. Man hilft sich dann dadurch, daß man eine Reihe von Messungen bei verschiedenen kleinen Feldstärken vornimmt, die gefundenen Permeabilitätswerte über der Feldstärke H aufträgt und anschließend die Permeabilitätskurve graphisch bis zu dem Wert für $H=0$ extrapoliert. Bei den weitaus meisten Materialien läuft die Permeabilitätskurve so regelmäßig auf einen definierten Grenzwert für $H \to 0$ zu, daß man an der Richtigkeit der Extrapolation kaum zweifeln kann. Anscheinend gibt es jedoch auch Werkstoffe, deren Permeabilität sich selbst bei den kleinsten erreichbaren Feldstärken noch so stark ändert, daß eine sichere Extrapolation auf den Permeabilitätswert für $H=0$ nicht möglich erscheint [1]. Eine Meßmethode, die den tatsächlichen Permeabilitätswert bei verschwindender Meßfeldstärke zu ermitteln gestattet, ist daher für die Klärung der physikalischen Verhältnisse erwünscht.

Eine sorgfältig aufgebaute Meßbrücke gestattet Messungen bis herunter zu Feldstärken von etwa 10^{-5} A/cm. Durch Kunstgriffe ließe sich diese Grenze sogar noch etwas weiter nach unten schieben. Letzten Endes wird aber das thermische Rauschen der Meßspule eine unvermeidliche untere Grenze für die Meßfeldstärke bedeuten. Die im folgenden beschriebene

Meßmethode verzichtet nun völlig auf eine von außen angeschlossene Wechselstromquelle und benützt direkt die thermische Rauschspannung der zu messenden Spule, um daraus die komplexe Permeabilität des Spulenkerns zu bestimmen [2]. Mit dieser Methode wurden Permeabilitätsmessungen an verschiedenen Materialien durchgeführt und mit entsprechenden Messungen nach der üblichen Brückenmethode verglichen.

2. Das thermische Rauschen einer Spule

Eine verlustbehaftete Spule läßt sich bei einer gegebenen Frequenz f entweder durch die Reihenschaltung einer idealen Induktivität L_R mit einem Verlustwiderstand R_R oder aber durch die gleichwertige Parallelschaltung einer idealen Induktivität L_P

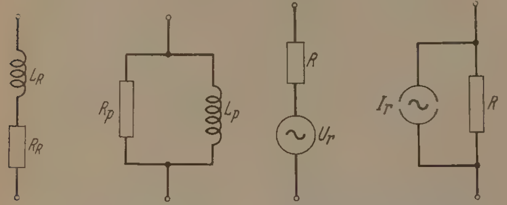


Abb. 1. Reihen- und Parallelersatzschaltbild einer verlustbehafteten Spule

Abb. 2. Darstellung eines rauschenden Widerstandes mit Rauschspannungs- oder Rauschstromquelle

mit einem Verlustwiderstand R_P beschreiben (Abb. 1). Beide Schaltungen sind bei der Frequenz f äquivalent und lassen sich ineinander umrechnen:

$$\left.\begin{aligned}
L_R &= \frac{L_P}{1+\frac{\omega^2 L_P^2}{R_P^2}} = \frac{L_P}{1+\frac{1}{Q^2}} \approx L_P \\
L_P &= L_R + \frac{R_R^2}{\omega^2 L_R} = L_R\left(1+\frac{1}{Q^2}\right) \approx L_R \\
R_R &= \frac{\omega^2 L_P^2/R_P}{1+\frac{\omega^2 L_P^2}{R_P^2}} = \frac{R_P/Q^2}{1+\frac{1}{Q^2}} \approx \frac{R_P}{Q^2} \\
R_P &= R_R + \frac{\omega^2 L_R^2}{R_R} = R_R(1+Q^2) \approx R_R Q^2 \\
Q &= \frac{\omega L_R}{R_R} = \frac{R_P}{\omega L_P}; \quad \omega = 2\pi f.
\end{aligned}\right\} \quad (1)$$

Für Spulengüten $Q \geq 10$ kann man ohne großen Fehler die angegebenen, sehr einfachen Näherungen benützen. Die Verlustwiderstände R_R bzw. R_P enthalten sämtliche Spulenverluste, gleichgültig, ob diese vom Kupferwiderstand der Wicklung oder vom magnetischen Kern herrühren. Messungen an wirklichen Spulen ergeben, daß die Schaltelemente beider Ersatzschaltungen mehr oder weniger stark frequenzabhängig sind. Man wird sich wahlweise der Reihen- oder der Parallel-Ersatzschaltung bedienen und in der Regel der Schaltung den Vorzug geben, deren Elemente im betrachteten Frequenzgebiet weniger stark frequenzabhängig sind. Oft ist es aber auch zweckmäßig, unabhängig davon die Ersatzschaltung zu wählen, die sich für die Rechnung am bequemsten in eine Gesamtschaltung einfügt.

Ohmsche Widerstände zeigen bekanntlich eine thermische Rauschspannung, weil ihre Leitungselektronen durch eine Art Reibung von den thermischen Gitterschwingungen des Leitermaterials angeregt werden. NYQUIST [3] hat mit Hilfe thermodynamischer Überlegungen die Größe der thermischen Fluktuationen in passiven elektrischen Schaltungen allgemein berechnen können. Er fand, daß man nicht nur jeden reinen Ohmwiderstand aus Widerstandsdraht, sondern genau so jeden Wirkwiderstand einer beliebig komplizierten passiven Schaltung (oder Ersatzschaltung) wenigstens formal als Sitz einer Rauschquelle betrachten muß. Schaltet man einen rauschenden Ohmwiderstand von außen an die Klemmen einer beliebigen passiven Schaltung, so wird er Wirkleistung an die in dieser Schaltung befindlichen Wirkwiderstände liefern und diese damit aufheizen. Im Zustand des thermodynamischen Gleichgewichts, den wir hier nur betrachten wollen, befinden sich alle Elemente der Schaltung auf gleicher Temperatur. Ein gegenseitiges Aufheizen der Elemente würde gegen die Voraussetzung des Gleichgewichts verstoßen. Es muß also jeder in der Schaltung vorhandene Wirkwiderstand selbst wieder als Rauschquelle wirken und im Mittel ebensoviel elektrische Rauschleistung an die Gesamtschaltung abgeben wie er von ihr empfängt.

Man kann sich die Rauschquelle eines Wirkwiderstandes als Rausch*spannungs*quelle in Reihe mit dem Wirkwiderstand oder als Rausch*strom*quelle parallel zum Wirkwiderstand vorstellen (Abb. 2). Da es sich um statistische Fluktuationen mit dem arithmetischen Mittelwert Null handelt, kennzeichnet man ihre Größe durch das mittlere Rauschspannungsquadrat $\overline{u_r^2}$ bzw. das mittlere Rauschstromquadrat $\overline{i_r^2}$. Nach NYQUIST liefert der (im allgemeinen frequenzabhängige) Wirkwiderstand $R(f)$ in dem differentiell kleinen Frequenzband df den Rauschbeitrag

$$d\overline{u_r^2} = 4kT\,R(f)\,df \qquad (2a)$$

bzw.

$$d\overline{i_r^2} = 4kT\,df/R(f). \qquad (2b)$$

In Wirklichkeit benützt man zur Messung der Rauschgrößen ein selektives Meßgerät mit der endlichen Bandbreite Δf. Wählt man dieses Δf so klein, daß der Wirkwiderstand $R(f)$ im ganzen Frequenzband Δf praktisch noch konstant bleibt, so kann man die Effektivwerte der Rauschquellen angeben zu

$$U_r(f) = \sqrt{\overline{u_r^2}} = \sqrt{4kT\,R(f)\,\Delta f} \qquad (3a)$$

bzw.

$$I_r(f) = \sqrt{\overline{i_r^2}} = \sqrt{4kT\,\Delta f/R(f)}. \qquad (3b)$$

In diesen Formeln bedeutet k die Boltzmann-Konstante ($1{,}38 \cdot 10^{-23}$ Wsec/Grad) und T die absolute Temperatur.

Für das Ergebnis ist es gleichgültig, ob man in einer Schaltung mit mehreren Wirkwiderständen jedem einzelnen dieser Wirkwiderstände eine Rauschquelle zuordnet, oder ob man alle Wirkwiderstände von vornherein zu einem entsprechend rauschenden Gesamtwirkwiderstand zusammenfaßt. Für die Rauschspannung einer Schaltung ist es ebenso gleichgültig, ob ein Wirkwiderstand physikalisch durch Widerstandsdraht, durch magnetische Verluste in einem Spulenkern oder durch einen sonstigen Mechanismus verursacht wird. Jeder Effekt, der Verluste erzeugt, verursacht auch ein entsprechendes thermisches Rauschen. Als physikalischen Sitz der Rauschquellen kann man jeweils die Stellen ansehen, an denen

bei einer Einspeisung der Schaltung von ihren Klemmen her Verluste entstehen würden. Nur dort sind letzten Endes die Leitungselektronen direkt oder indirekt mit den thermischen Gitterschwingungen gekoppelt. Ideale Induktivitäten oder Kapazitäten verbrauchen keine Wirkleistung und zeigen daher von sich aus auch kein thermisches Rauschen. Sie besitzen im Grunde auch gar keine definierte Temperatur. Trotzdem haben die Energiespeicher eine große Bedeutung für das Rauschen von Schaltungen. Einmal bestimmen sie weitgehend die spektrale Verteilung des Rauschens, zum andern bestimmen sie die Zahl der Freiheitsgrade einer Schaltung und damit die Größe der in der Schaltung enthaltenen Rauschenergie. Von dieser Tatsache werden wir noch Gebrauch machen.

Nach den bisherigen Ausführungen besitzt eine verlustbehaftete Spule eine thermische Rauschspannung, die sich nach Gl. (3a) aus ihrem Reihenverlustwiderstand R_R berechnen läßt. Umgekehrt kann man diesen Reihenverlustwiderstand $R_R(f)$ aus Gl. (3a) bestimmen, wenn man die thermische Rauschspannung der Spule bei der Frequenz f mit einem selektiven Instrument von der Bandbreite Δf mißt. Von dem so ermittelten Verlustwiderstand R_R zieht man anschließend den Wicklungswiderstand R_{cu} ab. Der restliche Verlustwiderstand $R_R - R_{cu}$ verkörpert die reinen Kernverluste. Aus ihm läßt sich der Verlustanteil der komplexen Permeabilität ermitteln.

Die Differenzbildung zwischen R_R und R_{cu} wird leider dann sehr ungenau, wenn der Kupferwiderstand der Wicklung den Hauptanteil der Verluste liefert. Dieselbe Schwierigkeit tritt allerdings auch bei allen Brückenmessungen an Spulen auf. Dort kann man jedoch die Wicklungsverluste praktisch eliminieren, indem man zwei eng gekoppelte Wicklungen auf den Kern aufbringt und statt des Spulenscheinwiderstandes die Gegeninduktivität zwischen den beiden Wicklungen mißt. Die Verluste der Gegeninduktivität stammen fast ausschließlich vom Kern [4]. Ein ähnliches Verfahren ist auch bei der Rauschspannungsmessung denkbar: Man bringt ebenfalls zwei eng gekoppelte, gleichsinnige Wicklungen auf den Kern auf. Die Windungszahlen wird man praktisch für beide Wicklungen gleich groß machen. Die vom Spulenkern herrührenden Rauschspannungsanteile in den beiden Wicklungen sind dann identisch, die von den Wicklungswiderständen herrührenden dagegen völlig unkorreliert. Mit einer elektrischen Anordnung von der Art eines Wattmeters bildet man den Mittelwert des Produkts der an beiden Wicklungen auftretenden Leerlaufspannungen. Bei der Mittelwertsbildung liefern die unkorrelierten Anteile keinen Beitrag. Das mittlere Produkt der beiden Spannungen entspräche also dem Rauschspannungsquadrat, das allein vom Kernverlustwiderstand $R_R - R_{cu}$ herrührt.

3. Die Bestimmung der komplexen Permeabilität aus dem Rauschen

Aus der thermischen Rauschspannung einer Spule läßt sich zunächst nur der Verlustwiderstand R_R bestimmen. Will man auch die Induktivität L_R mit Hilfe des thermischen Rauschens messen, so ist dazu ein besonderer Kunstgriff nötig. Dieser Kunstgriff besteht darin, daß man eine praktisch verlustfreie Kapazität C (mit Glimmer- oder Styroflexdielektrikum) parallel zur Spule legt und mit einem selektiven Meßverstärker die an der Parallelschaltung auftretende Rauschspannung in Abhängigkeit von der Frequenz mißt. Der Verlauf der so gemessenen Rauschspannung über der Frequenz entspricht der Resonanzkurve des aus der Spule und dem Kondensator gebildeten Schwingungskreises. Die Bandbreite Δf des selektiven Meßverstärkers muß natürlich klein sein gegenüber der Bandbreite B des zu untersuchenden Schwingungskreises. Die Verhältnisse lassen sich am besten an Hand der beiden in Abb. 3 gezeichneten Ersatzschaltungen übersehen.

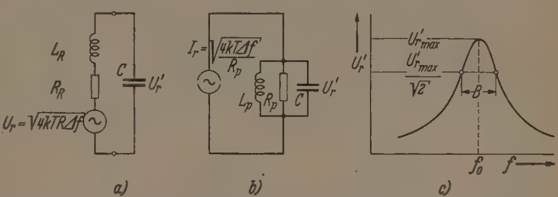


Abb. 3a—c. Thermisches Rauschen eines Schwingungskreises. a Reihenersatzschaltung; b Parallelersatzschaltung; c Frequenzgang der Rauschspannung am Kondensator

Abb. 3a geht von der Reihenersatzschaltung der Spule aus. Die mit dem Reihenverlustwiderstand R_R gekoppelte Rauschspannungsquelle U_r speist einen Reihenschwingungskreis. Gemessen wird die am Kondensator auftretende Rauschspannung U_r'. Die Spektralanteile von U_r, die in unmittelbarer Umgebung der Resonanzfrequenz $f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{L_R C}}$ liegen, treten mit der Kreisgüte $Q = \frac{\omega_0 L_R}{R_R}$ multipliziert am Kondensator in Erscheinung, während alle übrigen Frequenzanteile entsprechend ihrem Abstand von der Resonanzfrequenz schwächer zur Geltung kommen.

Abb. 3b benützt die Parallelersatzschaltung der Spule. Es ist in diesem Falle übersichtlicher, an Stelle einer Rauschspannungsquelle in Reihe mit R_P die äquivalente Rauscheinströmung I_r parallel zum Widerstand R_P zu benützen. Der Rauschstrom I_r ruft am Parallelschwingungskreis eine Spannung hervor, deren Spektralverteilung durch die Resonanzkurve dieses Kreises gegeben ist.

Zur Vereinfachung unserer allgemeinen Ausführungen wollen wir Spulengüten $Q \geq 10$ voraussetzen und uns für die Rauschspannungen nur in der Umgebung der Resonanzfrequenz interessieren. Dann können wir die Elemente der beiden Ersatzschaltungen als konstant ansehen und mit den einfachen Näherungen $L_R = L_P = L$ und $R_P/R_R = Q^2$ beide Schaltungen ineinander umrechnen.

Bei der praktischen Messung wird man zunächst die gemessene Rauschspannung über der Frequenz auftragen und die Resonanzfrequenz f_0 bestimmen, bei der die Rauschspannung ihr Maximum durchläuft. Die parallel zur Spule liegende Kapazität C (einschließlich Wickel- und Schaltkapazität) ist bekannt. Damit läßt sich aus der Rauschspannungsmessung die Spuleninduktivität bestimmen zu

$$L = \frac{1}{\omega_0^2 C}.$$

Auch die Spulenverluste lassen sich aus der gemessenen Rauschspannungskurve unmittelbar ermitteln. Die maximale Rauschspannung bei der Resonanzfrequenz f_0 entspricht nämlich dem Rauschen, das ein reiner Ohmscher Widerstand von der Größe des Resonanzwiderstandes R_P liefern würde. Man kann den selektiven Meßverstärker beispielsweise mit bekannten Ohm-Widerständen, die man probeweise an seinen Eingang legt, leicht eichen. Nach Gl. (3a) wird die Eichkurve eine Gerade, wenn man das Quadrat der Verstärkerausgangsspannung über dem am Eingang liegenden Widerstand R aufträgt. Aus der Größe der Rauschspannung bei der Resonanzfrequenz läßt sich dann über die Eichkurve der Spulenparallelwiderstand R_P ermitteln.

Eine weitere, oft noch bequemere Methode zur Bestimmung der Spulenverluste ist die Messung der Bandbreite B der Resonanzkurve nach Abb. 3c. Mit

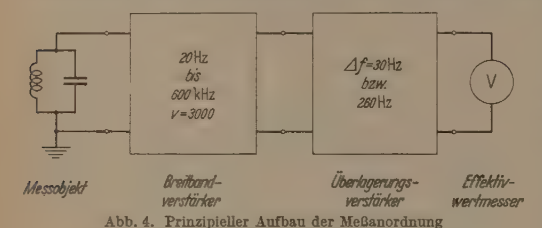


Abb. 4. Prinzipieller Aufbau der Meßanordnung

der in der Abbildung angegebenen Bandbreitedefinition gilt bekanntlich

$$Q = \frac{\omega_0 L}{R_R} = \frac{R_P}{\omega_0 L} = \frac{f_0}{B}.$$

Der Reihenverlustwiderstand der Spule ist damit

$$R_R = \omega_0 L \frac{B}{f_0} = \frac{B}{f_0} \cdot \frac{1}{2\pi f_0 C}.$$

Der komplexe Spulenscheinwiderstand läßt sich also bei der Resonanzfrequenz f_0 ohne die Hilfe einer äußeren Stromquelle allein aus dem thermischen Rauschen bestimmen. Aus dem Scheinwiderstand und den Spulendaten erhält man in bekannter Weise die komplexe Permeabilität:

$$\bar{\mu} = \mu_{LR} - j\,\mu_{RR} = \frac{L}{w^2 F/l} - j\,\frac{R_R - R_{cu}}{\omega_0 w^2 F/l}$$

(w = Windungszahl, F = Kernquerschnitt, l = Kraftlinienlänge).

Durch geeignete Wahl der Windungszahl und des Kondensators ist nach dieser Methode eine Permeabilitätsbestimmung bei sehr verschiedenen Frequenzen möglich. Die Methode eignet sich wie jedes Resonanzverfahren besonders für Spulen hoher Güte. Liegt die Spulengüte nennenswert unter 10, so muß man bei der Auswertung der Messungen gewisse Korrekturen einführen, und es leidet die Meßgenauigkeit wegen der flachen Resonanzkurven.

4. Meßanordnung

Den prinzipiellen Aufbau der von uns benützten Meßanordnung zeigt Abb. 4. Die an der abgestimmten Spule auftretende Rauschspannung wurde zunächst mit einem besonders rauscharmen Breitbandverstärker kräftig vorverstärkt. Der äquivalente Rauschwiderstand dieses Verstärkers betrug knapp 200 Ω und stieg infolge des Funkeleffekts unterhalb von 25 kHz mit $1/f$ an. Die dynamische Eingangskapazität des Verstärkers hatte einen Wert von etwa 30 pF und war damit gegenüber den von außen angeschalteten Schwingungskreiskapazitäten praktisch stets vernachlässigbar. Auf den Breitbandverstärker folgte ein selektiver Überlagerungsverstärker mit einer äquivalenten Bandbreite von 30 oder auch 260 Hz, mit dem sich das Frequenzgebiet zwischen 30 Hz und 600 kHz stetig überstreichen ließ. Am Ausgang des Überlagerungsverstärkers lag ein Effektivwertmesser zur Anzeige der Rauschspannung. Da die Bandbreite der angezeigten Rauschspannung während der Messungen konstant blieb, konnten wir zur Effektivwertmessung eine gewöhnliche, entsprechend geeichte Spitzengleichrichterschaltung benützen. Mit der stärker gespreizten Skala eines quadratisch anzeigenden Instruments hätte sich allerdings eine etwas höhere Ablesegenauigkeit erreichen lassen. Bei der geringen Bandbreite der Rauschspannungen von nur 30 Hz zeigt ein normales Anzeigeinstrument schon erhebliche statistische Zeigerschwankungen um den mittleren Ausschlag. Durch einen großen Kondensator läßt sich beispielsweise das Instrument künstlich träge machen. Die Zeigerschwankungen gehen dadurch zurück, aber die Messung wird entsprechend langwierig. Zugunsten einer rascheren Messung nahmen wir geringe Zeigerschwankungen und damit eine etwas verringerte Ablesegenauigkeit in Kauf.

Die Wicklung der Meßspulen wurde so gewählt, daß der Resonanzwiderstand R_P bei der jeweiligen Meßfrequenz mindestens einige Kiloohm betrug. Eine besondere Korrektur der Meßwerte zur Berücksichtigung des störenden Verstärkerrauschens war damit unnötig. Mit Hilfe einer auf die jeweilige Meßfrequenz abgestimmten Drossel, deren Scheinwiderstand groß gegenüber dem des Meßobjekts war, ließ sich die Meßspule überdies mit Gleichstrom vormagnetisieren. Auf diese Weise konnte die komplexe Permeabilität von Ringkernproben bei verschiedenen Gleichfeldstärken ebenfalls direkt aus Rauschspannungsmessungen ermittelt werden.

Die zu messenden Rauschspannungen lagen oft nennenswert unter 1 μV. Das Meßobjekt und der Verstärkereingang mußte daher sehr sorgfältig abgeschirmt und geerdet werden.

Neben den Rauschspannungsmeßgeräten hatten wir für unsere Versuche eine zuverlässige Maxwell-Brücke aufgebaut. Um einen möglichst sauberen Vergleich zwischen Brücken- und Rauschmessungen zu erhalten, wurden die beiden Messungen jeweils unmittelbar hintereinander ausgeführt. Damit wurden langsame Kriecherscheinungen eliminiert und Temperaturunterschiede bei zusammengehörigen Messungen vermieden.

5. Meßergebnisse

Im Gebiet kleiner Feldstärken ($H < H_c$) findet man wegen der Barkhausen-Sprünge eine Zunahme der Permeabilität mit steigender Wechselfeldstärke. Bei vielen Materialien erfolgt dieser Permeabilitätsanstieg praktisch linear mit der Feldstärke. Schon LORD RAYLEIGH [5] hat einen solchen linearen Permeabilitätsanstieg gefunden; man spricht daher auch von Rayleigh-Verhalten und von einem Rayleigh-Bereich.

PREISACH [6] konnte mit sehr einfachen statistischen Annahmen über die Barkhausen-Sprünge das Rayleigh-Verhalten erklären. Bei der Preisach-Statistik wird angenommen, daß auch beliebig kleine Feldstärken bereits Barkhausen-Sprünge auslösen können. Der lineare Permeabilitätsverlauf würde nach den Voraussetzungen von PREISACH bis herunter zur Feldstärke $H = 0$ streng gelten.

Man weiß nun, daß beispielsweise Nachwirkungen vom Richter-Typ oder auch Perminvareffekte [7] die Barkhausen-Sprünge bei kleinsten Feldstärken erschweren oder ganz unterbinden können. In diesen Fällen weicht die Permeabilitätskurve besonders bei

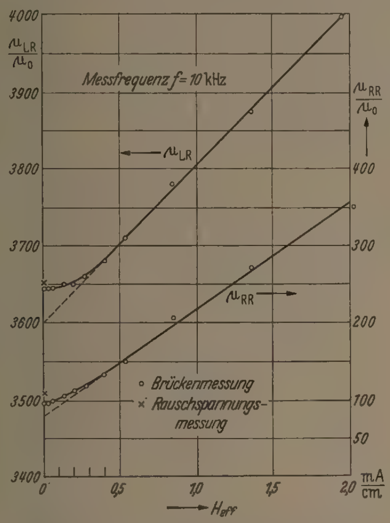


Abb. 5. Komponenten der komplexen Permeabilität eines hochpermeablen Nickel-Zink-Ferrits bei sehr kleinen Feldstärken

sehr kleinen Feldstärken unter Umständen erheblich von der Geraden ab und besitzt bei $H = 0$ eine mehr oder weniger waagrechte Tangente. Der lineare Permeabilitätsverlauf ist also — vor allem bei kleinsten Feldstärken — keineswegs selbstverständlich, und man muß die Messungen unter Umständen bis zu den kleinsten meßbaren Feldstärken ausdehnen, um mit Sicherheit auf den Permeabilitätswert für $H = 0$ extrapolieren zu können. Hier liefert die Permeabilitätsbestimmung aus der thermischen Rauschspannung eine wertvolle Kontrolle für die Richtigkeit des extrapolierten Wertes.

Abb. 5 zeigt das Ergebnis von Permeabilitätsmessungen an einem sehr hochpermeablen Ni-Zn-Ferrit, die bei einer Frequenz von 10 kHz in der Meßbrücke durchgeführt worden sind. Dargestellt sind die beiden Komponenten der komplexen Permeabilität über der Wechselfeldstärke. Der besseren Deutlichkeit wegen ist der Nullpunkt für die μ_{LR}-Skala stark unterdrückt worden. Sowohl μ_{LR} wie auch μ_{RR} zeigt im wesentlichen einen linearen Verlauf, der über den dargestellten Bereich hinaus bis zu Feldstärken von etwa 20 mA/cm hinaufreicht. Bei ganz kleinen Feldstärken unter 0,5 mA/cm biegen die Meßwerte deutlich vom linearen Verlauf ab, doch ist auch so eine Extrapolation der Messungen auf $H = 0$ möglich. Zum Vergleich haben wir nun auch die Ergebnisse der Rauschspannungsmessung durch Kreuze in die Abb. 5 eingetragen. Beide Meßverfahren liefern offensichtlich eine gute Übereinstimmung. Es ergab sich als Grenzwert aus der Brückenmessung:

$$\mu_{LR} = 3650\,\mu_0; \quad Q_{\text{Spule}} = 36; \quad \mu_{RR} = 96\,\mu_0.$$

Dagegen lieferte die Rauschmessung die Werte:

$$\mu_{LR} = 3710\,\mu_0; \quad Q_{\text{Spule}} = 32; \quad \mu_{RR} = 110\,\mu_0.$$

Die Unterschiede zwischen den beiden Meßverfahren liegen innerhalb der Meßgenauigkeit unserer Meßapparatur. Aus der Rauschspannung läßt sich die Spuleninduktivität stets sehr genau ermitteln (etwa auf $\pm 1\%$ bei Spulengüten $Q \geq 10$). Letzten Endes hängt diese Genauigkeit davon ab, wie genau man die Resonanzfrequenz der Rauschspannungskurve und die Größe des zugeschalteten Kondensators messen kann. Weniger genau ist die Bestimmung des Verlustwiderstandes R_R aus den Rauschkurven. Bei der Ermittlung der Resonanzspannung mußten wir (zum Teil wegen der statistischen Zeigerschwankungen) mit Fehlern bis zu 10% rechnen. Entsprechend diesen Fehlern haben die Werte der ermittelten Verlustwiderstände eine Unsicherheit von maximal 20%. Daher kommen

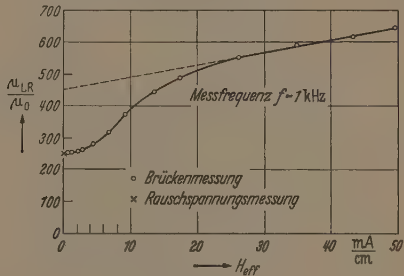


Abb. 6. Induktivitätspermeabilität μ_{LR} von Dynamoblech IV bei kleinen Feldstärken

wohl die stärkeren Abweichungen der beiden μ_{RR}-Werte.

Ebenfalls bei 10 kHz wurde ein Bandringkern aus Permenorm 3601 K1 ($d = 0{,}01$ mm; 36% Ni, Rest Fe) gemessen. Die Ergebnisse waren hier:

Brücke:	$\mu_{LR} = 2520\,\mu_0$;	$Q_{\text{Spule}} = 90$;	$\mu_{RR} = 17\,\mu_0$
Rauschen:	$\mu_{LR} = 2530\,\mu_0$;	$Q_{\text{Spule}} = 91$;	$\mu_{RR} = 15\,\mu_0$.

Ähnlich gute Übereinstimmung zwischen Brücken- und Rauschspannungsmessungen erhielten wir bei einer Probe Permenorm 5000 H2 (50% Ni, Rest Fe), bei Dynamoblech IV, sowie bei verschiedenen Ni-Zn- und Mn-Zn-Ferriten. Von diesen Messungen wollen wir hier lediglich die von Dynamoblech IV wiedergeben, weil dessen Permeabilitätsverlauf infolge des Kohlenstoffgehalts bekanntlich nennenswert vom Rayleigh-Verhalten abweicht. Gemessen wurde an einem Kern M42 mit einer Blechdicke von 0,35 mm. Wegen der Wirbelströme wurde eine Meßfrequenz von 1 kHz gewählt. Die Meßkurve für μ_{LR} in Abb. 6 zeigt, wie die Permeabilitätskurve bei kleinen Feldstärken gegenüber der Geraden stark nach unten ausbiegt und mit fast waagrechter Tangente auf den Nullpunkt zuläuft (vgl. [7]). Der aus der Rauschmessung gewonnene Meßpunkt ist wieder durch ein Kreuz in Abb. 6 gekennzeichnet. Er stimmt sehr genau mit dem Grenzwert der Brückenmessungen überein. Auch der für μ_{RR} aus dem Rauschen ermittelte Wert zeigt

im Rahmen der geringeren Meßgenauigkeit Übereinstimmung mit den Brückenmessungen.

Als Beispiel für eine Permeabilitätsbestimmung unter Gleichstromvormagnetisierung sollen Messungen an dem schon in Abb. 5 beschriebenen hochpermeablen Ni-Zn-Ferrit wiedergegeben werden. Die Meßfrequenz war wieder 10 kHz. Der Gleichstrom wurde über eine auf 10 kHz abgestimmte (Luft)Drossel auf

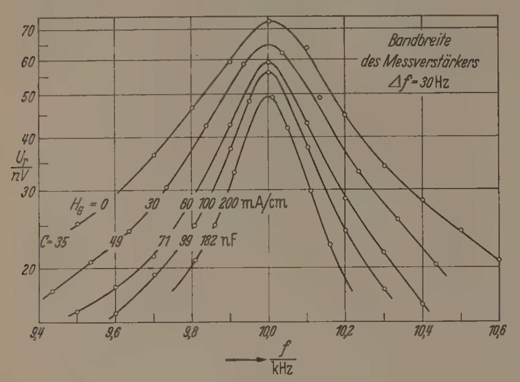


Abb. 7. Rauschspannungskurven eines gleichstromvormagnetisierten Ferritkerns

eine besondere Magnetisierungswicklung der Probe von wenigen Windungen gegeben. Die Meßwicklung der Probe wurde durch einen Kondensator auf 10 kHz abgestimmt. Für jede Gleichfeldstärke mußte die Größe des Kondensators neu bestimmt werden, damit trotz veränderter Induktivität immer die Resonanzfrequenz von 10 kHz erhalten blieb. Abb. 7 zeigt einige an der Probe gemessene Rauschspannungskurven bei verschiedenen Gleichfeldstärken. Die jeweils

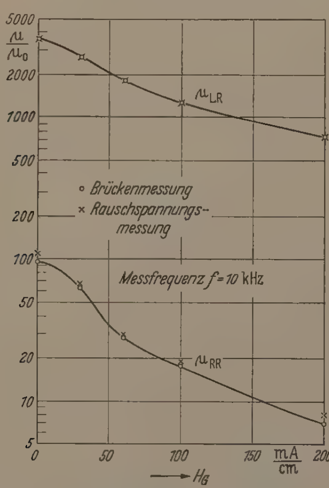


Abb. 8. Die beiden Komponenten der komplexen Permeabilität des vormagnetisierten Ferritkerns

ermittelten Werte der Abstimmkapazitäten sind an die Kurven angeschrieben. Man sieht, daß die Kapazitäten mit zunehmender Gleichfeldstärke stark vergrößert werden mußten. Das entspricht einer starken Induktivitätsabnahme. Aus der Höhe der Resonanzspitzen erkennt man ferner, daß der Parallelverlustwiderstand R_P im Gegensatz zur Induktivität nur wenig abnimmt. Mit wachsender Vormagnetisierung wächst also offensichtlich die Spulengüte $Q = R_P/\omega L$ an, und die Resonanzkurven werden entsprechend schlanker. In Abb. 7 ist das allerdings nicht besonders deutlich zu erkennen, weil der Kupferwiderstand der Wicklung mit wachsender Vormagnetisierung einen immer stärkeren Beitrag zu den Spulenverlusten liefert. Wir haben die Messungen der Abb. 7 in Permeabilitätswerte umgerechnet und dabei den Kupferwiderstand eliminiert. Die logarithmische Permeabilitätsskala der Abb. 8 zeigt deutlich, wie die Verlustpermeabilität μ_{RR} relativ rascher abnimmt als die Induktivitätspermeabilität μ_{LR}. Neben den Rauschspannungsmessungen haben wir wieder mit sehr kleinen Wechselfeldstärken entsprechende Brückenmessungen durchgeführt und die Meßergebnisse zum Vergleich in die Abb. 8 eingetragen. Die Übereinstimmung der beiden Meßmethoden liegt auch hier innerhalb der Meßgenauigkeit.

6. Physikalische Folgerungen

Unsere Messungen an einer Reihe von weichmagnetischen Materialien lassen erkennen, daß deren komplexe Permeabilität bei verschwindender Wechselfeldstärke im Rahmen der Meßgenauigkeit mit dem Wert übereinstimmt, den man jeweils auch aus Brückenmessungen durch Extrapolation auf die Feldstärke Null findet. Beide Komponenten der komplexen Permeabilität laufen also stetig auf den Grenzwert für $H = 0$ zu. Damit werden die Vorstellungen bestätigt, die man sich — etwa an Hand des Preisach-Diagramms — schon bisher von den Magnetisierungsvorgängen bei sehr kleinen Feldstärken gemacht hat. In unmittelbarer Umgebung der Feldstärke Null wären erhebliche Permeabilitätsänderungen nur dann möglich, wenn bei diesen kleinsten Feldstärken bevorzugt viele Barkhausen-Sprünge aufträten. Dafür liegt aber kein plausibler Grund vor; es ist dort im Gegenteil eher mit einer Behinderung der Barkhausen-Sprünge zu rechnen.

Bei unseren Rauschspannungsmessungen wird der Probe von außen keinerlei Wechselfeldstärke zugeführt. Im Kern treten aber infolge der Kernverluste offensichtlich thermische Induktionsschwankungen auf, die sich über die Wicklung als Rauschspannung nachweisen lassen. Wir sind gewohnt, eine Wechselfeldstärke als Ursache für Induktionsänderungen anzusehen. Wir wollen daher auch hier unabhängig von den wirklichen physikalischen Vorgängen formal eine thermische Rauschfeldstärke einführen. Diese Feldstärke soll mit der durch Messung bekannten komplexen Permeabilität des Kernmaterials gerade die von außen meßbare Rauschinduktion liefern. Da wir die Rauschspannung an der Spule in jedem Frequenzintervall df kennen (den rauschenden Wicklungswiderstand denke man sich hierbei aus der Spule herausgezogen), können wir mit Hilfe der Spulendaten und der komplexen Permeabilität auch die Größe der Feldstärkefluktuationen in jedem Frequenzintervall df berechnen. Den Effektivwert der Rauschfeldstärke H_{eff} erhält man dann durch Integration über alle Frequenzintervalle df von $f = 0$ bis $f = \infty$. Unter der vereinfachenden Annahme, daß die Permeabilität μ_{LR} frequenzunabhängig sein soll, findet man für die

effektive Rauschfeldstärke den Wert

$$H_{\text{eff}} = \sqrt{\overline{H^2}} = \sqrt{\frac{kT}{\mu_{LR} F l}} = \sqrt{\frac{kT}{\mu_{LR} V}} \quad (4)$$

($V = F \cdot l =$ Kernvolumen).

Zum gleichen Ergebnis führt auch der Gleichverteilungssatz der Thermodynamik, der besagt, daß jeder Freiheitsgrad die mittlere Energie $\frac{1}{2} kT$ enthält. Im Fall der rauschenden Spule kann man für die mittlere Energie

$$\overline{E} = \tfrac{1}{2} \mu_{LR} \overline{H^2} V = \tfrac{1}{2} kT$$

schreiben. Dieser Ausdruck führt auf dieselbe effektive Feldstärke wie Gl. (4).

Die effektive thermische Rauschfeldstärke ist unabhängig von der Größe der Kernverluste und unabhängig davon, ob der Kern bewickelt ist oder nicht. Ihr Wert wird auch nicht verändert, wenn man die Spulenwicklung über Ohm-Widerstände oder über Reaktanzen schließt. Solche Maßnahmen ändern lediglich das Frequenzspektrum der Feldstärke, nicht aber ihren Effektivwert [vgl. (8)]. Wenn wir beispielsweise einen Kondensator an die Meßspule anschließen, so wird dadurch der Hauptanteil der thermischen Fluktuationen auf die Umgebung der Resonanzfrequenz konzentriert, während die leerlaufende Spule ein sehr breites Rauschspektrum besitzt.

An Hand von Gl. (4) wollen wir noch den Zahlenwert der thermischen Rauschfeldstärke abschätzen, der bei unseren Messungen aufgetreten ist. Für den Ferritkern mit $\mu_{LR} = 3500\,\mu_0$ und mit dem Volumen von 0,8 cm³ finden wir beispielsweise bei Zimmertemperatur den Wert

$$H_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{1{,}38 \cdot 10^{-23} \cdot 293\ \text{A}^2}{3500 \cdot 1{,}256 \cdot 10^{-8} \cdot 0{,}8\ \text{cm}^2}} \approx 10^{-8}\ \text{A/cm}.$$

Dieser Wert liegt immerhin noch um einige Größenordnungen unter den kleinsten Wechselfeldstärken, die wir bei Brückenmessungen erreicht haben. Offensichtlich kann man bei einem gegebenen Kern die thermische Rauschfeldstärke nicht unterschreiten. Die Feldstärke Null läßt sich demnach bei normalen Temperaturen prinzipiell nicht erreichen.

Zusammenfassung

Beide Komponenten der komplexen Permeabilität ferromagnetischer Stoffe lassen sich als Funktion der Frequenz messen, ohne daß bei der Messung ein Wechselfeld von außen auf die Probe einwirkt. Zur Permeabilitätsbestimmung werden hierbei die unvermeidlichen thermischen Fluktuationen im Ferromagnetikum benutzt, die sich in Form von Rauschspannungen an einer Wicklung messen lassen. Die nach diesem Verfahren an verschiedenen Werkstoffen gemessenen Permeabilitätswerte zeigen gute Übereinstimmung mit den Werten, die man aus Brückenmessungen bei kleinen Wechselfeldstärken erhält.

Wir haben Herrn Professor R. FELDTKELLER sowie Herrn Professor K. FRÄNZ für wertvolle Ratschläge und klärende Diskussionen zu danken. Ferner danken wir den ehemaligen Diplom-Kandidaten, die während ihrer Studienarbeiten die von uns benutzten Geräte aufgebaut und erprobt haben.

Literatur: [1] SIXTUS, K.: Z. Physik **121**, 100 (1943). — [2] NONNENMACHER, W.: Nachrichtentechn. Fachber. **2**, 82 (1955). — [3] NYQUIST, H.: Phys. Rev. **32**, 110 (1928). — [4] WILDE, H.: Arch. elektr. Übertragung **6**, 354 (1952). — [5] LORD RAYLEIGH: Phil. Mag. **23**, 225 (1887). — [6] PREISACH, F.: Z. Physik **14**, 277 (1935). — [7] SCHREIBER, F.: Z. angew. Phys. **8**, 539 (1956). — [8] BAERWALD, H.: Techn. Phys. USSR. **4**, 556 (1937).

Dr. WALTER NONNENMACHER, Dipl. Ing. LUTZ SCHWEIZER,
Institut für Nachrichtentechnik der TH Stuttgart

Beitrag zur Klärung der magnetischen Nachwirkung durch Elektronendiffusion in Ferriten

Von A. v. KIENLIN

Mit 4 Textabbildungen

(Eingegangen am 22. Februar 1957)

a) Einführung

An manchen Ferriten beobachtet man bei Temperaturen zwischen etwa —200 und —50° C eine starke, temperaturabhängige magnetische Nachwirkung. WIJN [1] hat gezeigt, daß die Ursache der Nachwirkung eine Elektronendiffusion (Wertigkeitsaustausch) ist, die in den von ihm untersuchten Stoffen vermutlich zwischen zwei- und dreiwertigen Eisen-Ionen stattfindet. Es handelt sich um eine Nachwirkung vom Typ der Richter-Nachwirkung [2].

Bekanntlich ist die Richter-Nachwirkung auf den Platzwechsel im α-Eisen gelöster Kohlenstoffatome zurückzuführen [3]. Dieser Platzwechsel steht insofern mit den ablaufenden Magnetisierungsvorgängen in Beziehung, als sich bei Temperaturen, bei denen Diffusion möglich ist, der Kohlenstoff — in bezug auf die Richtung der spontanen Magnetisierung — anisotrop auf die Lücken des kubisch-raumzentrierten Eisengitters verteilt [3]. Die anisotrope Verteilung, die energetisch günstiger als die statistische ist, hat eine gegenüber anderen Einflüssen (Kristallenergie innere Spannungen usw.) zusätzliche Stabilisierung der spontanen Magnetisierung zur Folge [4]. Dies kann sich auf verschiedene Weise äußern: Wenn die Verteilung, nachdem sie sich einmal eingestellt hat, während eines Magnetisierungsvorganges bestehenbleibt (Diffusion wesentlich langsamer als der Magnetisierungsvorgang), dann wird dieser, wenn dabei die spontane Magnetisierung aus der energetisch günstigen Richtung herausgedreht wird, erschwert. Die Stabilisierung hat dann eine die Permeabilität erniedrigende Wirkung. Wenn hingegen die Dauer des Elementarvorganges der Diffusion von der Größenordnung der Dauer des Magnetisierungsvorganges ist, dann ist die Ausgangslage der spontanen Magnetisierung zwar durch die anisotrope Verteilung der Eisen-Ionen stabilisiert, aber die Verteilung gleicht sich, je nach der Temperatur mehr oder weniger verzögert, der Lage der spontanen Magnetisierung an. Der die Permeabilität erniedrigende Einfluß der Stabilisierung auf den

Magnetisierungsvorgang wird dabei aufgehoben, was ein verzögertes Nacheilen der Induktion hinter dem Feld, also eine magnetische Nachwirkung mit Frequenzdispersion zur Folge hat.

In Analogie zur Richter-Nachwirkung nehmen wir an, daß die Verknüpfung zwischen dem an den Ferriten beobachteten Nachwirkungsvorgang und der Elektronendiffusion darin besteht, daß sich im Material eine — in bezug auf die Richtung der spontanen Magnetisierung — anisotrope Verteilung der zwei- und dreiwertigen Eisen-Ionen auf den Oktaederplätzen des Spinellgitters einstellt. Naheliegend ist, die anisotrope Verteilung der zwei- und dreiwertigen Eisen-Ionen mit dem geordneten Zustand dieser Ionen bei Magnetit, der dort die Ursache für die Gitterumwandlung bei etwa $-155°$ C ist [5], in Verbindung zu bringen.

Wir vermuten, daß sich bei Magnetit ein geordneter Zustand nicht erst bei $-155°$ C einstellt, wenn das kubische Gitter in das orthorhombische [6] übergeht, sondern daß auch bei Temperaturen oberhalb $-155°$C zumindest „short-range order" ausgebildet ist[1]. Dieser Nahordnung entspricht, so vermuten wir ferner, die anisotrope Verteilung der verschiedenwertigen Eisen-Ionen, welche die magnetische Nachwirkung verursacht.

Das Bestehen einer Beziehung zwischen der oben angenommenen anisotropen Verteilung und dem Ordnungszustand bei Magnetit ist besonders wahrscheinlich, weil sich auch bei Magnetit die Ionenverteilung des geordneten Zustands abhängig von der Richtung der spontanen Magnetisierung ausbildet. Es wird nämlich, bei langsamer Abkühlung durch den Bereich der Gitterumwandlung, die der Richtung der spontanen Magnetisierung zunächstgelegene [100]-Richtung des kubischen Gitters stets zur c-Achse des orthorhombischen Gitters [6]. Durch die c-Achse wird eine magnetische Vorzugsrichtung bestimmt [6], die im Vergleich zu der nach obiger Annahme oberhalb $-155°$ C bestehenden sehr viel stabiler ist, weil die Elektronendiffusion unterhalb $-155°$ C durch die Verzerrung des kubischen Gitters gehemmt wird. Es ist jedoch, wie Calhoun [6] gezeigt hat, durch Anlegen eines starken Magnetfeldes auch unterhalb $-155°$ C möglich, in einzelnen Gitterbereichen die c-Achse und mit ihr die Vorzugslage in eine andere kristallographische Richtung umzuklappen, wobei sich die Ionenverteilung und die Gitterverzerrung entsprechend ändern.

Bei den Ferriten, an denen bisher Nachwirkung durch Elektronendiffusion beobachtet wurde [1], liegt die spontane Magnetisierung in einer der magnetisch leichten Würfeldiagonalen. Die anisotrope Verteilung der verschiedenwertigen Eisen-Ionen, durch die die spontane Magnetisierung zusätzlich stabilisiert wird, prägt also eine der [111]-Vorzugslagen zusätzlich aus. Im Gegensatz dazu ist im orthorhombisch verzerrten Magnetit durch die Ordnung eine Gitterrichtung zusätzlich stabilisiert, die einer der [100]-Richtungen des kubischen Gitters[2] entspricht. Trotzdem vermuten wir, daß die gleiche geordnete Verteilung, wie sie beim orthorhombischen Magnetit vorliegt, sich auch in den Stoffen einstellt, die Nachwirkung durch Elektronendiffusion zeigen. Diese Vermutung wird gestützt durch die bekannte Tatsache [8], daß beim Permalloy der gleiche Ordnungsvorgang verschiedene Gitterrichtungen — wenn auch verschieden stark — stabilisieren kann.

Die angeführten Überlegungen lassen erwarten, daß überall dort Nachwirkung durch Elektronendiffusion auftritt, wo sich neben dreiwertigen Eisen-Ionen auch eine für die Ausbildung einer geordneten Verteilung genügende Menge zweiwertiger Eisen-Ionen auf den Oktaederplätzen eines kubischen Ferritgitters befinden. Umgekehrt kann geschlossen werden, daß überall dort, wo eine Nachwirkung durch Elektronendiffusion beobachtet wird, auch ein geordneter Zustand verschiedenwertiger Ionen besteht[3].

Eine Nachwirkung durch Elektronendiffusion müßte, wenn obige Annahme richtig ist, bei Magnetit oberhalb $-155°$ C auftreten[4], und bei Ferriten mit mehr als 50 Mol-% Fe_2O_3 in den Ausgangsoxyden, sog. „überstöchiometrischen" Ferriten. Es wurde aber auch an Nickel-Zink-Ferriten mit stöchiometrischer Zusammensetzung der Ausgangsoxyde eine starke Nachwirkung dieser Art beobachtet. Die somit auch bei diesen Ferriten vorhandenen zweiwertigen Eisen-Ionen können nur auf Grund anormaler Sinterbedingungen entstanden sein, denn ein ideales stöchiometrisches Nickel-Zink-Ferrit enthält kein zweiwertiges Eisen.

Wie schon Wijn [1] gezeigt hat, kann das Auftreten einer Nachwirkung durch Elektronendiffusion mit der Übersinterung[5] der Kerne zusammenhängen. Ziel der vorliegenden Arbeit war es, den bisher nicht bekannten Zusammenhang zwischen der Übersinterung und dem Auftreten der Nachwirkung näher kennenzulernen und Aufschlüsse über den Mechanismus der Nachwirkung bei dem Sonderfall der übersinterten stöchiometrischen Ferrite zu gewinnen.

Die Untersuchungen wurden an einem Nickel-Zink-Ferrit durchgeführt (Zusammensetzung der Ausgangsoxyde: 18 Mol-% NiO; 32 ZnO; 50 Fe_2O_3). Es lagen Kerne vor, die bei verschiedenen Temperaturen zwischen 1175 und 1350° C jeweils 6 Std in Luft oder Sauerstoff gesintert und langsam abgekühlt worden waren.

b) Das Verhalten des elektrischen Widerstandes bei Übersinterung

In Übereinstimmung mit den Untersuchungen von Wijn [1] nimmt, wie Abb. 1 zeigt, der elektrische

[1] Die Gitterumwandlungstemperatur wäre demnach die Temperatur, bei der der Ordnungsgrad: (Fe_3O_4 geordneter Anteil)/(Fe_3O_4 Gesamtmenge) den kritischen Betrag überschreitet, bei dem das orthorhombische Gitter stabiler wird als das kubische.

[2] Bis $-140°$ C, wo ein Nulldurchgang der Kristallenergie stattfindet [7], ist oberhalb des Gitterumwandlungspunktes die [100]-Richtung magnetisch leichte Richtung.

[3] Die Nachwirkung durch Elektronendiffusion ist nicht auf den Wertigkeitsaustausch verschiedenwertiger Eisen-Ionen beschränkt. Dr. W. Gieseke hat an Mangan-Zink-Ferriten eine Nachwirkung beobachtet, die er auf den Wertigkeitsaustausch verschiedenwertiger Mangan-Ionen zurückführt. (Veröffentlichung demnächst in dieser Zeitschrift.)

[4] Welche Zeitkonstante diese Nachwirkung hat, ist eine andere Frage.

[5] Bei der Herstellung von Ferriten aus oxydischem Ausgangsmaterial ist bei einer bestimmten Sinterdauer eine Mindestsintertemperatur notwendig, wenn eine vollständige Umwandlung der Oxyde in Ferrit stattfinden soll. Unterhalb dieser Temperatur hat das Material noch nicht ganz ausreagiert; man nennt es „untersintert". Für die Sintertemperatur gibt es aber auch eine obere kritische Grenze, oberhalb welcher das Ferrit nicht mehr stabil ist und bei der Sinterung mehr oder weniger stark zerfällt. Ein solches Material nennt man „übersintert".

Widerstand mit zunehmender Sintertemperatur ab, und zwar um so mehr, je geringer der Sauerstoff-Partialdruck der Sinteratmosphäre ist. Die Abnahme des Widerstandes kann nur auf das Entstehen von zweiwertigem Eisen zurückzuführen sein, denn eine große elektrische Leitfähigkeit ist bei dem vorliegenden Ferrit nur auf Grund eines Wertigkeitsaustausches zwei- und dreiwertiger Eisen-Ionen möglich. In der Tat wurde analytisch bei einem bei 1350° C in Luft gesinterten Kern ein höherer Gehalt an zweiwertigem Eisen (etwa 0,8 Gew.-%) festgestellt als bei einem bei 1200° C gesinterten (etwa 0,4 Gew.-%). Zweiwertiges Eisen könnte, wenn man einen Zerfall des Ferrits bei der Übersinterung annimmt, als Eisenmonoxyd, also als zweite Phase, vorliegen. Ein teilweiser Zerfall dürfte bei den stark übersinterten Kernen auch tatsächlich stattgefunden haben. Hierfür spricht, daß die Permeabilität mit zunehmender Sintertemperatur abnimmt und ebenso das Verhältnis der remanenten Magnetisierung I_R zu der Sättigungsmagnetisierung I_S, das bei Sintertemperaturen von 1225° C und höher auf eine Scherung des Materials deutet (s. Tabelle 1).

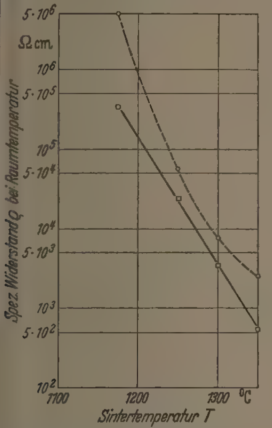


Abb. 1. Einfluß der Sintertemperatur auf den elektrischen Widerstand. Sinterdauer 6 Std. ○ Sinterung in Sauerstoff, □ Sinterung in Luft

Ein beim Zerfall eines Teils des Ferrits entstehendes unmagnetisches Eisenmonoxyd würde jedoch in dieser Form weder zu einer erhöhten elektrischen Leitfähigkeit noch zu einer Nachwirkung führen. Für beide

Tabelle 1. *Kerne in Luft gesintert*

	Sintertemperatur in Grad Celsius				
	1200	1225	1250	1300	1350
Permeabilität	1060	1090	1010	780	580
Verhältnis I_R/I_S . . .	0,72	0,41	0,39	0,37	0,32

Effekte ist es notwendig, daß zweiwertiges Eisen im Ferrit selbst entsteht. Nur dann befinden sich nämlich im Gitter verschiedenwertige Eisen-Ionen in unmittelbarer Nachbarschaft.

Das Auftreten von zweiwertigem Eisen in dem vorliegenden Nickel-Zink-Ferrit, dessen Ausgangsoxyde stöchiometrisch zusammengesetzt sind, ist unserer Ansicht nach dadurch bedingt, daß im Kristallgitter *Sauerstoff-Fehlstellen* vorhanden sind. Weil nämlich das Gesamtgitter auch mit Sauerstoff-Fehlstellen elektrisch neutral ist, muß entsprechend der Zahl der Fehlstellen eine ganz bestimmte Zahl von Fe^{++}-Ionen vorhanden sein. In Formeln ausgedrückt gilt:

Stöchiometrisch zusammengesetzte Ausgangsoxyde: $MeO + Fe_2O_3$,

Stöchiometrisches Ferrit ohne Sauerstoff-Fehlstellen: $Me^{++}Fe_2^{+++}O_4^{--}$,

Nicht stöchiometrisches, übersintertes Ferrit mit Sauerstoff-Fehlstellen: $Me^{++}Fe_{2-2\delta}^{+++}Fe_{2\delta}^{++}O_{4-\delta}^{--}$ (Me zweiwertiges Metall; bei dem vorliegenden Material: Zn; Ni).

Einen Beweis dafür, daß die bei der Übersinterung entstehenden Sauerstoff-Fehlstellen für das Auftreten von zweiwertigem Eisen verantwortlich sind, gibt die Feststellung, daß der den Widerstand erniedrigende Einfluß der Übersinterung durch Erhöhen des Sauerstoff-Partialdrucks abgeschwächt werden kann. Bei gleicher Sintertemperatur ist nämlich zu erwarten, daß die Zahl der Sauerstoff-Fehlstellen mit zunehmendem Sauerstoff-Partialdruck abnimmt.

c) *Das Auftreten magnetischer Nachwirkung bei Übersinterung*

Der in Abb. 1 gezeigte Zusammenhang zwischen dem elektrischen Widerstand und der Sintertemperatur wurde damit begründet, daß eine mit der Sintertemperatur zunehmende Menge von zweiwertigem Eisen im Spinellgitter vorhanden ist. Entsprechend müßte mit zunehmender Sintertemperatur in immer

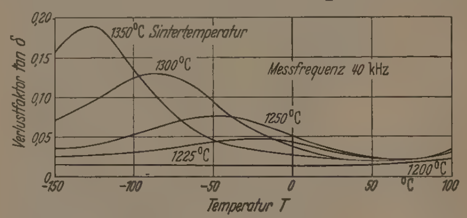


Abb. 2. Die Temperaturkurve des Verlustfaktors, an verschieden hoch gesinterten Kernen gemessen

größerem Ausmaß magnetische Nachwirkung vom Typ der Richter-Nachwirkung auftreten. In der Tat weisen die an den übersinterten Kernen bei 1 mOe gemessenen Temperaturkurven des Verlustfaktors die für die Nachwirkung durch Diffusion typischen Maxima auf. Abb. 2 zeigt diese Kurven, bei 40 kHz gemessen, für einige Sintertemperaturen zwischen 1200 und 1350° C. Während die 1200° C-Kurve noch kein Maximum, also keine Richter-Nachwirkung, aufweist, wird ab 1225° C das Maximum mit zunehmender Sintertemperatur immer steiler und höher und verlagert sich gleichzeitig zu tieferen Temperaturen. Die zunehmende Höhe des Maximums kann leicht durch den zunehmenden Fe^{++}-Gehalt erklärt werden. Die Tatsache, daß die Temperaturlage des Maximums vom Fe^{++}-Gehalt abhängig ist, versteht man jedoch nicht ohne weiteres. Sie stellt eine Abweichung vom Verhalten der Nachwirkung durch Kohlenstoffdiffusion im α-Eisen dar. Bei dieser nimmt die Höhe des Relaxationsmaximums mit zunehmendem Kohlenstoffgehalt zu, die Temperatur des Maximums bleibt aber die gleiche [3].

Da vermutet wurde, daß die unterschiedliche Temperaturlage der Maxima der beobachteten Nachwirkung durch eine unterschiedliche Aktivierungsenergie des Relaxations-Elementarvorganges bedingt ist, wurde diese Aktivierungsenergie bei den vorliegenden Proben bestimmt. Dazu wurde die Temperaturkurve des Verlustfaktors bei verschiedenen Frequenzen f zwischen 2 und 100 kHz gemessen und festgestellt, bei welcher Temperatur T die Maxima der Kurven liegen und schließlich diese Temperatur in einem ($\ln f$; $1/T$)-Diagramm über der Meßfrequenz aufgetragen. Das Ergebnis zeigt Abb. 3. Wie man

sieht, liegen die Meßwerte eines jeden der verschiedenen Kerne recht gut auf einer Geraden.

Der Nachwirkungsvorgang kann dann bekanntlich durch die Formel

$$\tau = \tau_\infty \, e^{\frac{E}{k\,T}}$$

E = Aktivierungsenergie, k = Boltzmann-Konstante, T = Temperatur in Grad Kelvin

beschrieben werden, wobei die Zeitkonstante τ des Relaxationsvorgangs bei der Temperatur des tan δ-Maximums der reziproken Meßfrequenz entspricht. Man erkennt aus Abb. 3, daß die Aktivierungsenergie, die proportional der Steigung der Geraden ist, mit wachsender Sintertemperatur, also mit zunehmendem Fe^{++}-Gehalt abnimmt. Extrapoliert man die Geraden bis zur Temperatur $T = \infty$; $(1/T = 0)$, was in Abb. 4 geschehen ist, dann sieht man, daß τ_∞ mit der Sintertemperatur zunimmt (vgl. Tabelle in Abb. 4). Die Extrapolation zeigt außerdem, daß f (20° C), die Frequenz, bei der die Temperaturkurve des Verlustfaktors ihr Maximum bei Raumtemperatur hat, mit zunehmender

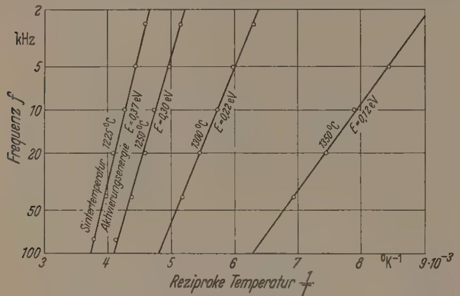
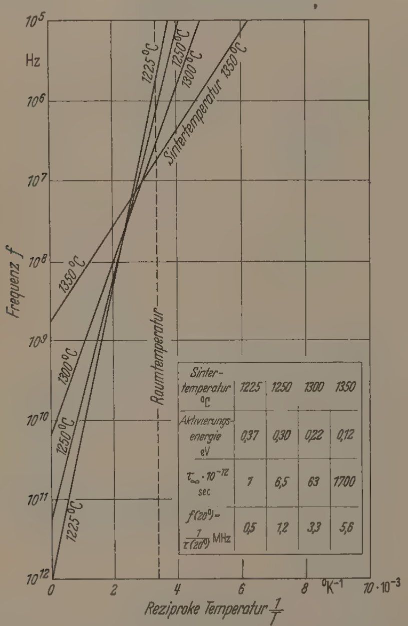


Abb. 3. $(\ln f; 1/T)$-Geraden des Relaxationsmaximums verschieden hoch gesinterter Kerne



Sintertemperatur °C	1225	1250	1300	1350
Aktivierungsenergie eV	0,37	0,30	0,22	0,12
$\tau_\infty \cdot 10^{-12}$ sec	1	6,5	63	1700
$f(20^0) = \frac{1}{\tau(20^0)}$ MHz	0,5	1,2	3,3	5,6

Abb. 4. Extrapolation der $(\ln f; 1/T)$-Geraden von Abb. 3

Sintertemperatur ansteigt; ein Befund, der mit der aus Abb. 2 zu entnehmenden unterschiedlichen Temperatur der bei 40 kHz gemessenen Maxima zusammenhängt.

Diese Ergebnisse scheinen auf den ersten Blick unverständlich, denn die Aktivierungsenergie der Kohlenstoffdiffusion im α-Eisen ist unabhängig von der Kohlenstoffkonzentration, und so möchte man annehmen, daß die Aktivierungsenergie für den Wertigkeitsaustausch zweier im Gitter benachbarter, verschiedenwertiger Eisen-Ionen in erster Näherung ebenso unabhängig von der gesamten Anzahl zweiwertiger Ionen im Gitter ist.

Was die Größe τ_∞ anbelangt, so kann man sie — wenn man voraussetzt, daß in den verschieden gesinterten Kernen die Elektronen in erster Näherung die gleiche Diffusionsgeschwindigkeit haben — mit der Länge der Elektronensprünge, die bei dem Magnetisierungsvorgang ablaufen, in Beziehung bringen. (Ähnliche Überlegungen für die Kohlenstoff-Nachwirkung durch Feldtkeller und Sorger [9].) Aus den gemessenen Werten von τ_∞ wäre demnach zu folgern, daß die mittlere Weglänge der zu einem Wertigkeitsaustausch führenden Elektronensprünge bei den stark übersinterten Kernen größer ist als bei den schwach übersinterten. Auch dieses Ergebnis ist nicht ohne weiteres verständlich, denn es ist naheliegend, zunächst anzunehmen, daß der Elektronensprung stets gleich groß ist, nämlich von einem Fe^{++}-Oktaeder-Ion zu einem der sich auf den benachbarten Oktaederplätzen befindenden Fe^{+++}-Ionen hin (etwa 3 Å) und unabhängig ist von der (relativ zu der Fe^{+++}-Ionenkonzentration sehr geringen) Zahl der Fe^{++}-Ionen.

Bei näherer Betrachtung lassen sich jedoch beide angeführten Tatsachen, wie folgt, auf die gleiche Ursache zurückführen und deuten.

d) Die Deutung der Abhängigkeit von E und τ_∞ von der Sintertemperatur

Im letzten Abschnitt konnte mit Hilfe der Neutralitätsbedingung des Spinellgitters die Ursache für das Auftreten von zweiwertigen Eisen-Ionen geklärt werden. Dabei wurde nur die makroskopische Neutralitätsbedingung, also die Bedingung für die Neutralität des Gesamtgitters in Betracht gezogen. Nun wollen wir darüber hinaus die mikroskopische Neutralitätsbedingung in unsere Überlegungen einbeziehen. Sie besagt, daß Vorgänge im Material (bei der Sinterung und auch bei einer Elektronendiffusion) das Bestreben haben, so abzulaufen, daß auch bis in die kleinsten Gitterbereiche hinein das Coulomb-Potential möglichst gering wird.

Eine Sauerstoff-Fehlstelle kann im Unterschied zum ungestörten Gitter als eine gegenüber diesem zusätzliche, doppelt positive Ladung aufgefaßt werden (fehlendes zweiwertiges elektronegatives Ion). Diese Ladung ist an einen ganz bestimmten Ort, nämlich an die Fehlstelle gebunden.

Entsprechend kann ein Fe^{++}-Ion als eine zusätzliche negative Ladung aufgefaßt werden, die jedoch nicht an einen bestimmten Ort gebunden zu sein braucht, sondern vermöge des Wertigkeitsaustausches der zwei- und dreiwertigen Eisen-Ionen im Gitter wandern kann.

Die negativen bzw. positiven, gegenüber dem ungestörten Gitter zusätzlichen Ladungen sollen nun für

ch allein betrachtet werden. Dabei soll vereinfachend ngenommen werden, daß sich die Ladungen im Mittelunkt des zweiwertigen Eisen-Ions bzw. der Fehltelle befinden. Zwischen den so definierten Ladungen esteht ein elektrostatisches Feld, das annähernd das ifferenzfeld zwischen dem — innerhalb kleinster ereiche neutralen — ungestörten Gitter und dem itter mit Sauerstoff-Fehlstellen darstellt.

Wenden wir nun unsere Aufmerksamkeit dem Feld u, das zwischen einer positiven Fehlstellen-Doppeladung und zwei negativen, von zwei zweiwertigen isen-Ionen herrührenden Ladungen besteht. Die usätzlichen Ladungen haben in diesem Feld ein oulomb-Potential, das im folgenden als „Zusatzotential" bezeichnet wird. Man erkennt, daß das usatzpotential des den Wertigkeitsaustausch beverkstelligenden Elektrons um so größer ist, je weiter as Elektron von der Fehlstelle entfernt ist. Die zwei urch das Vorhandensein der Sauerstoff-Fehlstelle belingten Fe^{++}-Ionen werden deshalb, abweichend von ler bei rein thermischer Diffusion sich einstellenden tatistischen Verteilung, stets bestrebt sein, sich in unnittelbarer Nähe der Fehlstelle aufzuhalten.

Aber auch andere, äußere Einflüsse können für eine on der statistischen Verteilung abweichende Lage der Fe^{++}-Ionen bestimmend sein: Es kann z.B. durch ein ußeres elektrisches Feld eine Kraft auf das Wertigeitselektron ausgeübt werden. Ferner bewirkt, wie chon eingangs erwähnt, das Vorhandensein spontaner Magnetisierung, daß die Oktaederplätze des Spinellitters energetisch unterschiedlich günstig für die weiwertigen Eisen-Ionen sind.

Wenn in dem Fall der hier interessierenden Magneisierungsvorgänge ein Wertigkeitselektron eine andere nergetisch günstigere Lage aufzusuchen bestrebt ist, lann sind verschiedene Elektronensprünge möglich. Es können z.B. die Elektronensprünge verschieden ang sein, weil das Wertigkeitselektron während des Magnetisierungsvorganges nicht nur einem einzigen Wertigkeitsaustausch unmittelbar benachbarter Eisen-Ionen zu unterliegen braucht, sondern auch, vermöge iner Serie von Wertigkeitsvertauschungen, weitere Entfernungen, über Ketten benachbarter Eisen-Ionen inweg, zurücklegen kann. Es sollen nun drei Arten von Elektronensprüngen unterschieden werden:

1. Ein Sprung, bei dem der Abstand Fe^{++}-Fehltelle nicht größer wird. Dabei findet ein Wertigkeitsustausch zweier von der Fehlstelle gleich weit entfernter Ionen statt (Aktivierungsenergie E_1).

2. Ein Sprung, bei dem dieser Abstand größer wird (Aktivierungsenergie E_2).

3. Ein Sprung von der Nachbarschaft einer Fehltelle in die Nachbarschaft einer anderen Fehlstelle, lie nur ein Fe^{++}-Ion in ihrer Umgebung hat (Aktivieungsenergie E_3).

Im ersten Fall wird das Zusatzpotential des Werigkeitselektrons nicht erhöht. Die Aktivierungsnergie E_1 des Wertigkeitsaustausches wird die gleiche Größenordnung haben wie die vom Wertigkeitsaustausch der Oktaeder-Ionen des Magnetits, bei dem eine Aktivierungsenergie von etwa 0,1 eV gemessen wurde [4]. Im zweiten Fall nimmt das Zusatzpotential des Wertigkeitselektrons zu, E_2 ist also größer als E_1.

Um einen Anhaltspunkt über die Größenordnung les Betrages der Differenz $E_2 - E_1$ zu erhalten, kann man auf das obige, allerdings grob vereinfachte Modell zurückgreifen. Bei diesem wurde als Ort der gegenüber dem ungestörten Gitter zusätzlichen Ladungen der Mittelpunkt der Sauerstoff-Fehlstelle bzw. des Fe^{++}-Ions angenommen. Danach würde ein Wertigkeitselektron, das einem der Fehlstelle unmittelbar benachbarten Eisen-Ion zugehört (Nachbar erster Ordnung[1]), bei einem Sprung zu einem der Fehlstelle zweitnächst[2] benachbarten, also von dieser weiter entfernten Eisen-Ion gegen das Zusatzpotential eine Arbeit von etwa 3 eV leisten. Die Ablösungsarbeit ins Unendliche würde etwa 7 eV betragen.

Auch bei der dritten Art von Elektronensprüngen muß gegen das Zusatzpotential Arbeit geleistet werden. E_3 ist deshalb auch größer als E_1, jedoch um so weniger, je näher die Fehlstellen beieinanderliegen.

Wenn wir voraussetzen, daß während eines Magnetisierungsvorganges alle drei Arten von Elektronensprüngen ablaufen, dann sind an der Nachwirkung Elementarvorgänge mit verschiedenen Zeitkonstanten und verschiedenen Aktivierungsenergien beteiligt. Dabei braucht auf Grund des obigen Modelles keine bestimmte Abhängigkeit der Aktivierungsenergie von der Zeitkonstante (Sprunglänge) des Elementarvorganges zu bestehen.

Dies macht den Nachwirkungsvorgang, der bei den übersinterten Proben abläuft, komplizierter als den der Nachwirkung durch Kohlenstoffdiffusion im α-Eisen, bei dem eine im wesentlichen[3] einheitliche Aktivierungsenergie vorhanden ist.

Immerhin hat das Experiment gezeigt, daß für die Abhängigkeit der Temperaturlage des Relaxationsmaximums von der Meßfrequenz wie bei der Kohlenstoff-Nachwirkung das Gesetz: $\tau = \tau_\infty \exp(E/kT)$ gilt.

Die Überlagerung aller zur Nachwirkung beitragender Elementarvorgänge führt also zu einem Relaxationsvorgang mit einer in bezug auf die Lage des Relaxationsmaximums resultierenden Zeitkonstante τ und resultierenden Aktivierungsenergie E. Die Abhängigkeit dieser beiden Größen von der Sauerstoff-Fehlstellen-Konzentration läßt sich auf Grund der oben angeführten Zusammenhänge qualitativ deuten.

Dazu muß jedoch noch bewiesen werden, daß der Nachwirkungsmechanismus nicht ausschließlich durch Sprünge vom Typ 1 bestritten wird, sondern, wie oben vorausgesetzt, beim Magnetisierungsvorgang auch Sprünge vom Typ 2 und 3 ablaufen können.

Wiederum kann man sich die vorliegenden Verhältnisse am Magnetit klarmachen, bei dem die geordnete Verteilung der zwei- und dreiwertigen Eisen-Ionen im orthorhombischen Gitter bekannt ist. Es wechseln sich in diesem Gitter, wenn man die Oktaederplätze betrachtet, senkrecht zur magnetisch leichten c-Richtung Ebenen ab, die nur mit zweiwertigen bzw. nur mit dreiwertigen Eisen-Ionen besetzt sind [5].

[1] Der Abstand vom Mittelpunkt eines Oktaeder-Ions zum Mittelpunkt des benachbarten Sauerstoff-Ions bzw., wenn keine Gitterverzerrung eintritt, zum Mittelpunkt der benachbarten Sauerstoff-Fehlstelle, beträgt $a/4$ (Gitterkonstante $a \approx 8,4$ Å bei Ferriten).

[2] Der Abstand vom Mittelpunkt des Sauerstoff-Ions bzw. der Fehlstelle zu einem Oktaeder-Ion, das Nachbar zweiter Ordnung ist, beträgt $\frac{a}{4}\sqrt{3}$.

[3] Neel [4] erklärt die von Richter [2] beobachtete Streuung der Zeitkonstanten der Kohlenstoff-Nachwirkung durch eine geringe Streuung der Aktivierungsenergie der Elementarvorgänge der Diffusion.

Wird die c-Richtung, z.B. durch ein starkes Magnetfeld [6], in eine neue zur bisherigen c-Richtung senkrechte Lage umgeklappt, so ist, wie man sich leicht an einem Gittermodell klarmachen kann, dazu notwendig, daß 50% der Oktaeder-Ionen ihre Wertigkeit austauschen. Für diesen Wertigkeitsaustausch sind nur Elektronensprünge zwischen unmittelbar benachbarten Eisen-Ionen erforderlich. In einem ungestörten Magnetitgitter laufen also nur Sprünge ab, die mit den Sprüngen vom Typ 1 zu vergleichen sind. Anders liegen jedoch die Verhältnisse bei den übersinterten Kernen:

Wie in der Einleitung erläutert, ist anzunehmen, daß bei den Kernen, die verschiedenwertiges Eisen enthalten und Nachwirkung durch Elektronendiffusion zeigen, eine Ordnung der verschiedenwertigen Eisen-Ionen besteht. Wie im Falle des Magnetits werden sich dabei die zweiwertigen Eisen-Ionen bevorzugt auf Ebenen ansammeln, die anisotrop zur Richtung der spontanen Magnetisierung liegen. Da jedoch bei den übersinterten Kernen die Konzentration der zweiwertigen Ionen sehr viel geringer ist als beim Magnetit, können sich dort nicht Ebenen mit zwei- bzw. dreiwertigen Ionen abwechseln, sondern es werden neben einer Oktaederebene mit überdurchschnittlich hoher Fe^{++}-Konzentration stets — parallel dazu — viele Ebenen liegen, die relativ wenig zweiwertiges Eisen enthalten. Es müssen deshalb — bei einer Änderung der Richtung der spontanen Magnetisierung — auch Elektronensprünge über mehrere Oktaederplätze hinweg ablaufen, wenn sich die anisotrope Verteilung der Fe^{++}-Ionen dem Magnetisierungsvorgang anpassen soll.

Wie oben vorausgesetzt, werden also in den übersinterten Proben auch Sprünge vom Typ 2 und 3 abzulaufen bestrebt sein. Inwieweit solche Sprünge auch tatsächlich ablaufen, ist ein statistisches Problem: Die Wahrscheinlichkeit für einen Sprung ist um so größer, je geringer die Aktivierungsenergie des Vorgangs ist. Diese Betrachtungsweise gibt uns nun den Schlüssel zur Klärung der beobachteten Erscheinungen:

In einem Material mit geringer Fehlstellenkonzentration ist — wegen des großen Abstandes der Fehlstellen — kaum ein Unterschied zwischen Sprüngen vom Typ 2 und 3 zu machen. Im Verhältnis zu den kurzen Sprüngen vom Typ 1 werden diese weiten Sprünge auf Grund ihrer hohen Aktivierungsenergie selten auftreten. Es ist zu erwarten, daß der Wert der resultierenden Aktivierungsenergie zwischen dem Betrag von E_1 (nach unserer Annahme etwa 0,1 eV) und dem Betrag von E_2 bzw. E_3 (nach unserem Modell etwa 5 eV) liegt.

In einem Material mit hoher Fehlstellenkonzentration wird die Aktivierungsenergie E_3 wegen des geringen Abstandes der Fehlstellen nur wenig höher als E_1 sein. Deshalb ist bei einem Magnetisierungsvorgang das Auftreten von weiten Sprüngen vom Typ 3 genau so wahrscheinlich wie das von kurzen Sprüngen vom Typ 1. Sprünge vom Typ 2 (mit hoher Aktivierungsenergie) werden hingegen praktisch nicht vorkommen, besonders weil auch weite Sprünge vom Typ 3, über Ketten von Fehlstellen hinweg, möglich sind.

In Übereinstimmung mit den Meßergebnissen ist also zu erwarten, daß mit zunehmender Fehlstellenkonzentration die resultierende Aktivierungsenergie geringer wird, und die resultierende Zeitkonstante wegen der häufiger vorkommenden weiten Sprünge zunimmt.

Die Deutung der gemessenen Aktivierungsenergie als einer aus der Überlagerung von drei Typen von Elementarvorgängen resultierenden Aktivierungsenergie gibt noch weitere Hinweise: Es ist grundsätzlich möglich, daß bei verschiedenen Vorgängen, die alle durch dieselbe Elektronendiffusion bestimmt sind, an der gleichen Probe verschiedene Aktivierungsenergien beobachtet werden. So könnte es z.B. sein, daß bei elektrischer Leitung ein anderer der drei oben unterschiedenen Sprungtypen bevorzugt ist als bei einem Magnetisierungsvorgang. Die einzelnen Typen sind dann bei diesen Vorgängen in einem verschiedenen Verhältnis an der Diffusion beteiligt.

Bei Magnetisierungsvorgängen ist es möglich, daß eine Abhängigkeit der Aktivierungsenergie von der Amplitude des Meßfelds besteht. Es ist anzunehmen, daß mit zunehmender Amplitude der Bloch-Wand-Verschiebungen die weiten Sprünge bevorzugt werden.

Zusammenfassung

An manchen stöchiometrischen Ferriten wird eine sehr starke, temperaturabhängige magnetische Nachwirkung beobachtet. Sie kann, wie man weiß, durch den Wertigkeitsaustausch zwei- und dreiwertiger Eisen-Ionen im Kristallgitter des Ferrites bedingt sein.

In der vorliegenden Arbeit wird geklärt, warum die Nachwirkung bei stöchiometrischen Nickel-Zink-Ferriten, die normalerweise nur dreiwertiges Eisen enthalten, auftreten kann. Die Ursache liegt in der Übersinterung des Materials, bei der Sauerstoff-Fehlstellen im Ferritgitter entstehen und als Folge davon eine entsprechende Anzahl dreiwertiger Eisen-Ionen zweiwertig wird.

Wie beobachtet wurde, nimmt die Aktivierungsenergie des Nachwirkungsvorganges mit dem Grad der Übersinterung, also mit der Zahl der Sauerstoff-Fehlstellen, ab. Diese Tatsache wird durch das unterschiedlich starke Haften der zweiwertigen Eisen-Ionen an der Umgebung der Fehlstellen erklärt.

Herrn Dr. M. Kornetzki und Herrn Dr. W. Gieseke danke ich für wertvolle Hinweise und Diskussionen.

Literatur: [1] Wijn, H.P.J.: Dissertatie Rijks-Universiteit Leiden 1953. — [2] Richter, G.: Ann. Phys. **29**, 605 (1937). — [3] Snoek, J.L.: Physica **6**, 161 u. 591 (1939). — [4] Neel, L.: J. Physique Rad. **13**, 249 (1952). — [5] Verwey, E.J.W., u. P.W. Haayman: Physica **8**, 979 (1941). — Verwey, E.J.W., P.W. Haayman u. F.C. Romeijn: J. Chem. Phys. **15**, 181 (1947). — [6] Calhoun, B.A.: Phys. Rev. **94**, 1577 (1954). — [7] Bickford, L.R.: Phys. Rev. **78**, 449 (1950). — [8] Kaja, S.: Rev. Mod. Phys. **25**, 49 (1953). — [9] Feldtkeller, R., u. G. Sorger: AEÜ **7**, 79 (1953).

Dr. Albrecht von Kienlin,
Wernerwerk für Bauelemente der
Siemens & Halske A.G., München

Thermische, plastische Nachwirkungen an Vickerseindrücken in Glas

Von **W. Diehl** und **R. Schulze**

Mit 6 Textabbildungen

(Eingegangen am 17. Januar 1956)

Vickerseindrücke in Glas verändern beim Erwär-en der Probe Gestalt und Tiefe. Diese interessante eststellung machten wir zum erstenmal, als Vickers-ndrücke in Schott-Glas FK 6 mit einer dünnen chicht Al bedampft worden waren und das Glas orher durch Glimmen — womit man die Reinigung er Oberfläche bezweckt — erwärmt worden war. bb. 1 zeigt die Interferenzaufnahme eines 500 g-Eindruckes in FK 6. Abb. 2 zeigt den gleichen Eindruck nach dem Bedampfungsvorgang. Der Vickerseindruck hat nach der Erwärmung sowohl seine äußere Gestalt als auch seine Tiefe deutlich geändert. Die Eindrucktiefen lassen sich durch Auszählen der Interferenzstreifen vergleichen.



Abb. 1. Vickerseindruck 500 g in Schott-Glas FK 6, photographiert im Interferenzmikroskop, $\lambda = 546\ m\mu$



Abb. 2. Vickerseindruck 500 g in FK 6, nach dem Glimmen und Bedampfen mit Al. Interferenzaufnahme

Bei Versuchen, Vickerseindrücke in Glas FK 6 elektronenmikroskopisch auszuwerten, wurde der Einfluß der Erwärmung auf die Gestalt der Eindrücke abermals festgestellt[1]. Die Bilder, die dabei von den Vickerseindrücken im Elektronenmikroskop hergestellt wurden, zeigten gegenüber der vorher lichtmikroskopisch beobachteten Gestalt stark veränderte Eindrucksformen. Nach unseren Erfahrungen mit dem beim Bedampfen vorgenommenen Glimmen und der hierdurch hervorgerufenen Änderung der Eindruckgestalt, Abb. 1 und 2, schlossen wir auch in diesem Fall auf Erwärmung der Probe beim Herstellen der Abdrücke für das Elektronenmikroskop. Eine Nachfrage ergab, daß für die Abdrücke Kunststoffe benutzt worden waren, die unter Wärmeentwicklung aushärten. Unsere Vermutung bestätigte sich also.

Im Anschluß daran führten wir eine nähere Untersuchung über die Änderung der Eindrucksgestalt in Abhängigkeit von der Erwärmung der Glasprobe durch: Mit dem Leitz-Kleinhärteprüfer Durimet wurde ein Eindruck in FK 6 hergestellt und die Diagonale ausgemessen. Danach wurde die Probe auf den Heiztisch eines Interferenzmikroskops gelegt, und die Interferenzschichtschnitte parallel zur Oberfläche justiert. So ergaben sich die bekannten Interferenzbilder der Vickerseindrücke, aus denen die Gestalt des Eindruckinneren und die Tiefe bestimmt werden kann. Man stellt überraschenderweise fest, daß die Eindrucktiefe schon bei Zimmertemperatur um 55% geringer ist, als sie nach der Länge der Diagonalen sein müßte. Dies beruht auf der auch von Metallen her bekannten elastischen Tiefenrückfederung. Beobachtet man nun den Streifenverlauf während sich die Probe auf einer erhöhten Temperatur befindet, so ergeben sich für die Änderung der Eindrucktiefe mit der Zeit die in Abb. 3 dargestellten Zusammenhänge. Der Grenzwert, dem die Eindrucktiefe mit der Zeit zustrebt, liegt um so näher an der Oberfläche, je höher die Temperatur ist. Kontrollversuche zeigten eine derartig gute Reproduzierbarkeit, daß eine nachträgliche rohe Temperaturbestimmung mit Hilfe dieses Effektes möglich erscheint. Bei Zimmertemperatur fällt der Grenzwert praktisch mit dem sofort gemessenen Wert zusammen, so daß es in diesem Fall nicht notwendig erscheint, mit der

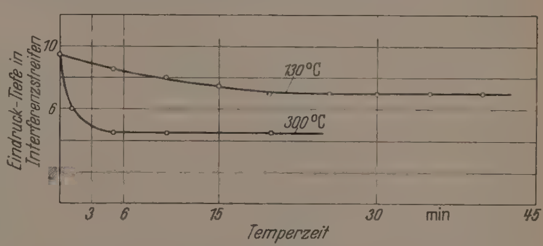
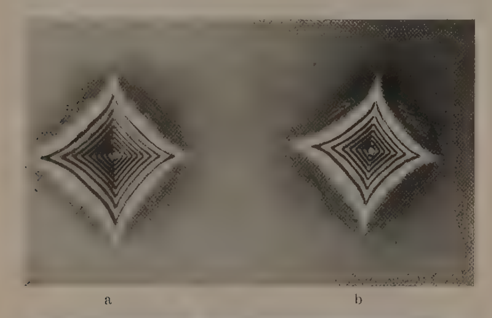


Abb. 3. Tiefe von Vickerseindrücken 300 g in FK 6, in Abhängigkeit von Temperatur und Zeit

[1] Die elektronenmikroskopischen Untersuchungen hat freundlicherweise Herr Dipl.-Phys. H. Poppa im Physikalischen Laboratorium in Mosbach bei Herrn Professor Dr.-Ing. E. Brüche durchgeführt, wofür beiden Herren an dieser Stelle besonders gedankt sei.

Ausmessung der Tiefe erst eine Zeitlang zu warten. Die Abb. 4a zeigt einen 300 g-Eindruck wie er bei Zimmertemperatur erscheint, Abb. 4b einen Eindruck mit 300 g, der etwa 30 min lang einer Temperatur von 130° C ausgesetzt wurde und Abb. 4c gibt einen weiteren 300 g-Eindruck wieder, der 10 min lang auf 300° C erwärmt wurde. Aus diesen Bildern ist unmittelbar zu ersehen, wie stark sich die Form der Eindrücke mit dem Tempern ändert und wie zugleich die Eindrucktiefe zurückgeht. Interessant ist, daß der Eindruck der Abb. 4c nur noch etwa 6% des Volumens besitzt,



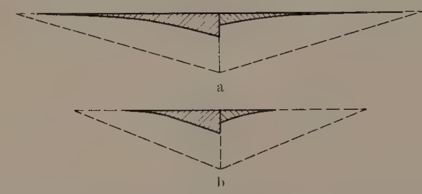
a b



c

Abb. 4a—c. Interferenzbilder von Vickerseindrücken 300 g, in FK 6, a bei Zimmertemperatur, b nach 30 min auf 130° C, c nach 15 min auf 300° C

welches er in dem Augenblick hatte, als der ins Glas eindringende Vickersdiamant zur Ruhe kam! Eindrücke verschiedener Größen (also durch andere Prüfkräfte erzeugte) gehen um ungefähr den gleichen Prozentsatz zurück.



a

b

Abb. 5a u. b. Rekonstruierte Querschnitte von Vickerseindrücken 300 g in FK 6. a Diagonalschnitt, b Schnitt durch die Seitenmitten. Gestrichelt, ursprüngliche Eindruckgröße. Linker Schnitt bei Zimmertemperatur, rechter Schnitt nach 15 min auf 300° C

Die Auswertung solcher Messungen im Diagonalschnitt zeigt Abb. 5a. Links ist ein Diagonalschnitt durch einen 300 g-Eindruck gelegt, wie er bei Zimmertemperatur entsteht. Rechts sieht man den entsprechenden Schnitt nach 10 min langer Erwärmung auf 300° C. Die Schnitte wurden an Hand von Interferenzaufnahmen rekonstruiert. Abb. 5b stellt die entsprechenden Schnitte durch die Seitenmitten dar. Die gestrichelten Linien geben die Schnitte durch den Eindruck in der Endstellung des eingedrungenen Diamanten an. Die Größe dieser gestrichelten Schnitte wurde aus der elektronenmikroskopisch gemessenen Länge der Eindruckdiagonalen und der Gestalt der Vickerspyramiden berechnet. An anderer Stelle soll Näheres darüber berichtet werden.

Ganz ähnlich wie FK 6 verhalten sich einige andere von uns gemessene Gläser, z. B. reines Quarzglas, ferner die Schott-Gläser ZK 2, ZK 5, ZK 7, FK 3, K 10 und BK 10. Abb. 6 zeigt den Rückgang der Eindringtiefe in ZK 2 beim Tempern mit 145 und 300° C.

Neben diesen Gläsern, bei denen die Eindringtiefe mit höherer Temperatur stark zurückgeht, steht eine Reihe anderer Gläser, bei denen die Eindringtiefe nur wenig zurückgeht. Zu diesen gehören F 1, F 4, LF 6 und BK 1.

Schließlich konnte bei einer Reihe weiterer Gläser kein Zurückgehen der Eindringtiefe durch Tempern

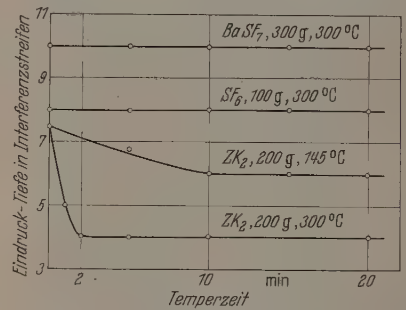


Abb. 6. Tiefe von Vickerseindrücken in verschiedenen Schott-Gläsern in Abhängigkeit von Temperatur und Zeit

unterhalb 300° C festgestellt werden, das sind z. B. SF 6, BaSF 7, LHN, 2B und NR[1]. In Abb. 6 sind die Messungen für SF 6 und BaSF 7 eingetragen.

Nach unseren Beobachtungen scheint ein gewisser Gegensatz zwischen der Sprödigkeit der Gläser und dem Zurückgehen der Eindrucktiefe zu bestehen und zwar in dem Sinne, daß sehr spröde Gläser meist kein oder nur ganz geringes Zurückgehen der Eindrucktiefe mit der Temperatur zeigen. Diese Gläser zeigen neben Sprüngen und Ausbrüchen um die Eindrücke herum auch besonders stärkere Aufwölbungen.

Die Tatsache, daß auch bei reinem Quarzglas die Eindrucktiefe beim Tempern stark zurückgeht, und der Vergleich zwischen der FK 6- und der SF 6-Gruppe lassen vermuten, daß mit steigender Ordnungszahl der in das Glas eingebauten Kationen die Stärke der Nachwirkungen abnimmt. Ob dabei die Größe oder die Polarisierbarkeit des einzelnen Ions oder die Modifikation des Glasgerüstes infolge des Einbaus die dominierende Rolle spielen, ist noch ungeklärt.

Um den Vorgang der mit der Temperatur zurückgehenden Eindringtiefe zu verstehen, können die Untersuchungen von BRIDGMAN und SIMON [1] und ANDERSON [2] herangezogen werden, die in Gläsern unter hohen hydrostatischen Drucken bleibende Dichteänderungen bis zu 17% erzielten; diese konnten erst durch Erwärmen zum Teil wieder rückgängig gemacht werden. Wenn es sich hierbei um einen Parallelfall handelt, kann angenommen werden, daß auch unter dem hohen Druck der Vickerspyramide eine örtliche

[1] Die Gläser LHN, 2 B und NR sind Bleiphosphat- und Bleiboratgläser aus dem Leitz-Glaslabor. An dieser Stelle möchten wir Herrn WEISSENBERG für wertvolle Hinweise danken.

Dichteänderung in bestimmten Gläsern eintritt, und daß diese nicht rein elastisch ist, sondern bestehenbleibt, wenn sie nicht durch Erwärmung zum Teil rückgängig gemacht wird.

Es ist zu vermuten, daß das Glas in hochkomprimiertem Zustand eine erhöhte Elastizitätsgrenze besitzt. Wenn das der Fall ist, wird verständlich, daß schon aus diesem Grunde aus Härtemessungen an sich verdichtenden Gläsern nicht ohne weiteres auf die Elastizitätsgrenze geschlossen werden kann.

Zusammenfassung

Vickerseindrücke in optischen Gläsern zeigen neben der von Metallen her bekannten elastischen Tiefenrückfederung, die hier sogar mehr als 50% der Eindrucktiefe ausmachen kann, einen zum Teil starken weiteren Rückgang der Eindrucktiefe mit erhöhter Temperatur. Dieser kann bei einzelnen Gläsern, z.B. Schott-Glas FK 6 so viel ausmachen, daß von dem ursprünglichen Eindruck insgesamt nur etwa 6% des Volumens erhalten bleiben. Reines Silikatglas, Quarzglas, und Gläser mit Kationen niedriger Ordnungszahl zeigen die thermische Nachwirkung stark, Gläser mit schweren Kationen zum Teil gar nicht. Als Ursache werden durch hohen Druck erzielbare bleibende Dichteänderungen im Glas angenommen.

Literatur: [1] BRIDGMAN, P. W., and I. SIMON: J. Appl. Phys. 24, 405 (1953). — [2] ANDERSON, O.L.: J. Appl. Phys. 27, 943 (1956).

Walter DIEHL, Dr. Reinhart SCHULZE,
Ernst Leitz G.m.b.H., Wetzlar

Die Vergütung von Seignettesalzoberflächen

Von FRITZ ASSELMEYER und WALTER BIENERT

Mit 5 Textabbildungen

(Eingegangen am 23. Januar 1957)

1. Einleitung

Aus früheren Arbeiten von F. ASSELMEYER [1] und H. RAETHER [2] ist bekannt, daß die Widerstandsfähigkeit von Steinsalzoberflächen gegenüber Wasserdampf durch Rekristallisation verbessert werden kann.

Die Vorgänge bei der Rekristallisation und der Zerstörung von Kristalloberflächen werden durch die verschiedenen Beträge der Bindungsenergie der einzelnen Gitterbausteine verständlich, wie sich aus den Überlegungen von KOSSEL [3] ergibt. Ein Gitterbaustein der Oberfläche besitzt seine maximale Energie dann, wenn er regulär in eine Kristallfläche eingebaut ist. Eine geringere Bindungsenergie besitzt ein Baustein an der Kante und die kleinste in einer Ecke. Die gleichen Beträge an Bindungsenergie werden natürlich bei der Anlagerung des Bausteines in die verschiedenen Kristallagen frei, bzw. müssen bei der Abtrennung aufgewendet werden. Die Zerstörung eines Kristalls setzt somit zuerst an den Ecken und Kanten als Stellen kleinerer Bindungsenergie ein. Ferner besteht beim Aufbau einer frischen Kristallfläche die Tendenz möglichst ideale Kristallflächen auszubilden. Wie es an Steinsalz bereits durchgeführt wurde, kann deshalb durch diese neue Kristallisation eine durch Schleifen und Polieren gestörte Oberfläche wieder ausgeheilt werden. Wie der Rekristallisationsvorgang eingeleitet wird, hängt von den übrigen physikalischen Eigenschaften des Kristalles ab. Möglichkeiten liegen vor in der Umbildung der Oberfläche aus der Lösung der Substanz infolge einer Wasserdampfbehandlung ohne oder mit Mischkristallbildung. Eine andere Möglichkeit ist die Wärmebehandlung entweder durch Totalerwärmung des ganzen Kristalles oder unter Umständen auch durch Oberflächenerhitzung.

Die Verfahren sind grundsätzlich auf alle Kristalle anwendbar. Im vorliegenden Falle interessierte auf Grund ihrer dielektrischen Eigenschaften die Vergütung von Seignettesalzplättchen. Es ergab sich die konkrete Fragestellung:

1. Festlegung des Rekristallisationsverfahrens für die Oberflächen von Seignettesalzplättchen;
2. Erfassung irgendwelcher Verbesserungen der Stabilität der Oberfläche.

2. Arbeitsmethode zur Vergütung der Seignettesalzoberfläche

Seignettekristalle werden für hochfrequenztechnische Zwecke aus Lösungen in größeren Tafeln gewonnen. Aus solchen Tafeln wurden Plättchen etwa der Größe 10×10 mm mit verschiedener Dicke bis max. 1 mm herausgeschnitten, beiderseitig geschliffen und poliert. Die kristallographische C-Achse des rhombischen Kristalles lag in der quadratischen Oberfläche. Sehr genau wurde darauf geachtet, daß die Plättchen einer Serie stets aus den gleichen Bereichen der Zuchtplatte genommen wurden. Da Seignettesalz bei 55,6° C seine Beständigkeit verliert und sich in eine Mischung von Kalium- und Natriumtartrat umwandelt [4], scheidet zur Vergütung die Wärmebehandlung aus. Endliche Umwandlungsgeschwindigkeiten sind nur bei Temperaturen von einigen hundert Grad zu erhalten.

Die Rekristallisation der Oberfläche geschieht deshalb in diesem Fall am besten durch Ablösen der obersten Kristallschichten in Wasserdampf. Ein Glasbecher mit 25 cm³ Inhalt, etwa zu $^2/_3$ mit angewärmtem Wasser gefüllt, wurde durch eine Messingscheibe abgeschlossen. Die Kristallplatte ruhte auf dem schneidenförmigen oberen Rand einer kreisförmigen Öffnung ($d = 10$ mm ⌀) der Scheibe. Infolge der erhöhten Temperatur des Wassers kondensiert der Wasserdampf zum Teil am Messingring und an dem Kristall. Es entsteht auf dem Kristall eine Wasserhaut, in der sich die obersten Kristallschichten lösen. In manchen Fällen wurde der Kristall auch freitragend im Wasserdampf im bestimmten Abstand von der Wasseroberfläche behandelt. Die Menge des kondensierten Wassers wurde durch Einwirkungszeit

und Wassertemperatur so bemessen, daß alle gestörten Kristallschichten gelöst wurden. Die Erfüllung dieser Forderung wurde rein qualitativ nach der Rekristallisation unter dem Mikroskop kontrolliert. Als Richtwerte dienen folgende Daten: Bei einem Abstand Kristall—Wasseroberfläche von 2 cm und einer Temperaturdifferenz von 10° C liegen die erforderlichen Zeiten der Einwirkung zwischen 1 und 10 min, je nach der vorhergehenden Bearbeitung der Oberfläche.

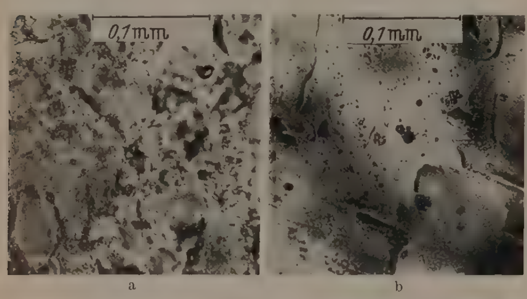


Abb. 1a u. b. Vergütung geschliffener Seignettesalzoberflächen. a Mikrobild der geschliffenen unvergüteten Fläche, b Mikrobild der geschliffenen vergüteten Fläche

Dieses an sich einfache aber gut reproduzierbare Verfahren wurde nun auf verschieden vorbehandelte Oberflächen angewendet:

1. Natürliche Zuchtflächen zeigen zwar makroskopisch große Unebenheiten in Rillenform, die parallel zur kristallographischen C-Achse verlaufen. Bei starker Vergrößerung erkennt man jedoch den geschlossenen Aufbau der Oberfläche, bei der eine Rekristallisation durch das oben beschriebene Verfahren keine wesentliche Änderung der Oberflächenstruktur erkennen ließ. Dies ist auch sofort verständlich, da die Zuchtplatte bereits die Einkristallform als beste Struktur besitzt. Eine elektronenmikroskopische Nachprüfung konnte leider bisher noch nicht durchgeführt werden.



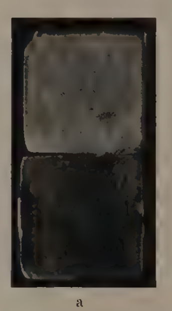
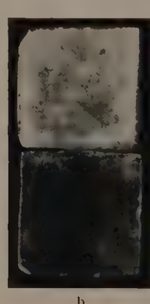
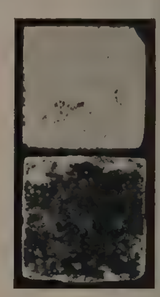
Abb. 2. Polierte Seignettesalzfläche teils vergütet, teils unvergütet

2. Geschliffene Oberflächen sind makroskopisch glatt, im mikroskopischen Bild ist aber die Oberfläche zerrissen und die Orientierung völlig verlorengegangen (Abb. 1a). In diesem Fall bewirkt die Rekristallisation eine tiefgehende Veränderung der Oberfläche (Abb. 1b). Zwar gelingt es nicht sämtliche Unebenheiten der Fläche abzulösen, doch die vorher vorhandenen zahlreichen kleinen Erhebungen und Ecken werden abgetragen und eingeebnet. Der Aufbau der Fläche wird gleichmäßiger. Auf dem Bild sieht man auch die starke Verunreinigung der Fläche durch Schmirgelkörner, die vom Schleifen zurückgeblieben sind.

3. Die besten Erfolge wurden mit vorher polierten Flächen erzielt. Das Polieren geschieht am besten nach dem sehr sorgfältigen Feinstschliff auf weicher dünner Seide, die über einer glatten Metall- oder Glasfläche aufgespannt ist. Als Poliermittel bewährte sich Chromoxydgrün mit Alkohol. Damit erhält man vollkommen transparente und glatte Flächen, die aber von Polierkratzern durchzogen sind. Bei diesen Flächen läßt sich durch Rekristallisation eine optisch leere Fläche erzielen. Abb. 2 zeigt an einer Fläche als Beispiel die Grenze zwischen dem vergüteten oberen und dem nicht vergüteten unteren Teil mit den Polierkratzern. Die Dicke der aufgebrachten Wasserhaut ist dabei kritisch. Einerseits muß die ganze gestörte Schicht abgelöst werden, andererseits bewirkt eine zu dicke Wasserhaut sofort eine ungleichmäßige Rekristallisation.

3. *Stabilität der Oberflächen an trockener Luft oder im Vakuum*

Entscheidend für den Zerfall, d.h. für die Abgabe des Kristallwassers ist das Verhältnis der Partialdrucke des Kristallwassers gegenüber dem des Wasserdampfes im umgebenden Medium. Die folgenden Untersuchungen beschränken sich auf das Verhalten in trockener Luft. Diese Ergebnisse gelten auf Grund von Versuchen auch für das Verhalten im Vakuum. Zur Durchführung der Stabilitätsprüfung wurden die vergüteten Seignettesalzplättchen in einen abgeschlossenen Raum mit Luftfeuchtigkeit Null und variabler Temperatur gebracht. Den mit der Zeit fortschreitenden Zerfall der Oberfläche, d.h. den Verlust des Kristallwassers erkennt man an der Intensität der weißen Färbung der Fläche. Diese Stabilitätsprüfung wurde auch wieder auf die verschieden vorbehandelten Oberflächen angewendet.

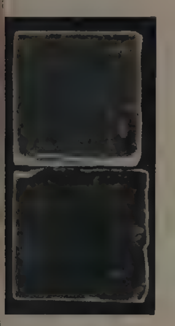
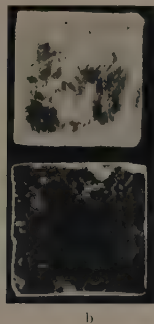
a b c

Abb. 3a—c. Zerstörung geschliffener Seignettesalzoberflächen in trockener Luft bei 28° C (obere Reihe geschliffen unvergütet, untere Reihe geschliffen vergütet). a Einwirkzeit 0 min, b Einwirkzeit 20 min, c Einwirkzeit 60 min

1. Nachdem bereits weiter oben gesagt wurde, daß eine Verbesserung der Oberflächenstruktur von natürlichen unbehandelten Zuchtplatten durch Rekristallisation nicht möglich ist, erscheint es klar, daß auch die Beständigkeit dieser Flächen nicht verbessert werden kann. Die Versuche bestätigen dies auch vollkommen. Es zeigte sich, daß die Resistenz der Zuchtflächen gegenüber trockener Luft mit und ohne Vergütung die gleiche war.

2. Bei geschliffenen Flächen erkennt man jedoch einen starken Einfluß auf die Beständigkeit. Abb. 3 zeigt zwei geschliffene Kristalle, von denen der eine vorher oberflächenvergütet wurde. Die vergütete

Fläche ist deutlich durch die größere Transparenz zu erkennen (vgl. Abb. 3a). Beide Kristalle wurden gleichzeitig trockener Luft bei 28° C ausgesetzt. Nach 20 min (vgl. Abb. 3b) ist die vergütete Fläche noch fast unversehrt, während bei der anderen Fläche die Zerstörung schon stark eingesetzt hat. Nach 60 min (vgl. Abb. 3c) ist die unvergütete Fläche praktisch

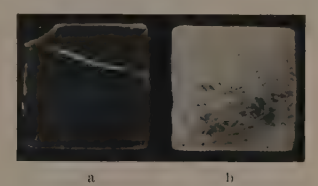

a b c

Abb. 4a—c. Zerstörung polierter Seignettesalzflächen in trockener Luft bei 28° C (obere Reihe poliert unvergütet, untere Reihe poliert vergütet). a Einwirkzeit 0 min, b Einwirkzeit 20 min, c Einwirkzeit 60 min

völlig zerstört, während bei der vergüteten einige Ansätze beginnender Zerstörung feststellbar sind, d.h. allmählich setzt auch bei der vergüteten Fläche der Zerfall ein, obwohl nach 60 min die Zerstörung noch nicht so weit fortgeschritten ist wie bei der nur geschliffenen Fläche bereits nach etwa einem Drittel der Zeit. An den Kristallplatten selbst ist auch sehr schön der Einsatz der Zerstörung an Ecken und Kanten zu erkennen. Bei mehrmaliger Wiederholung ergab sich im Durchschnitt immer die gleiche Verbesserung der Stabilität um den Faktor 3, d.h. die vergütete Seignettesalzoberfläche zeigt nach etwa der dreifachen Zeit denselben Zerstörungszustand wie die unvergütete nur geschliffene Oberfläche.

3. Für die polierten Flächen zeigt Abb. 4 das Fortschreiten der Zerstörung in Abständen von 20 und 60 min bei 28° C Lufttemperatur und sonst unter den gleichen Bedingungen wie bei 2. Auch hier ergab sich wieder im Mittel der Faktor 3 für die Verbesserung der Stabilität. Wesentlich für die Stabilitätsuntersuchung der Kristalloberfläche ist die Einhaltung der Temperatur bei den Versuchsbedingungen. Abb. 5 gibt ein Beispiel. Zwei gleich polierte unvergütete Kristallplatten wurden 30 min lang trockener Luft ausgesetzt und zwar Platte A bei der Temperatur von 13° C und Platte B bei 28° C. Abb. 5 zeigt, daß unter sonst gleichen Bedingungen bei höherer Temperatur die Zerstörung viel schneller und kräftiger einsetzt. Bei einer Untersuchung an mehreren Kristallen ergab sich, daß eine merkliche Zerfallsgeschwindigkeit in trockener Luft oder im Vakuum erst oberhalb 16 bis 20° C auftritt. Dies erklärt auch das wechselnde Verhalten von Seignettesalzoberflächen im Vakuum beim Aufdampfen von Elektroden. Durch entsprechend niedrige Temperatur kann man somit erreichen, daß die Oberflächen der Plättchen im Hochvakuum nicht zerstört werden.

Über den Einfluß der Oberflächenbeschaffenheit von Seignettesalzplättchen bei der Messung des D.K. wird an anderer Stelle berichtet.



a b

Abb. 5a u. b. Einfluß der Temperatur bei Zerstörung der Oberfläche von odlierten, unvergüteten Seignettesalzplatten. a 30 min 13° C, b 30 min 28° C

Zusammenfassung

Es wurde gezeigt, daß die bei Steinsalz bereits mit Erfolg durchgeführte Rekristallisation der Oberfläche auch auf Seignettesalzkristalle anwendbar ist. So gelang es durch Aufbringen einer dünnen Wasserhaut, Schleifspuren teilweise und Polierkratzer völlig auszuheilen. Neben dieser rein optischen Verbesserung der Oberfläche wird durch diese Vergütung auch die Stabilität im Vakuum und in trockener Luft ungefähr um den Faktor 3 erhöht. Unvergütete, polierte Seignettesalzoberflächen zeigen bei Temperaturen unter 16° C im Hochvakuum keine Zerfallserscheinungen.

Für die Unterstützung bei der Durchführung der vorliegenden Arbeit wird den Firmen C.A. Steinheil Söhne, München, und Dr. Steeg und Dr. Reuter, Bad Homburg, herzlich gedankt.

Literatur: [1] Asselmeyer, F.: Untersuchungen an Steinsalz. Diss. München 1941, DRP 760375. — [2] Raether, H.: Untersuchung verschieden behandelter Steinsalzoberflächen. Reichsberichte für Physik 1944. — [3] Kossel, W.: Die molek. Vorgänge beim Kristallwachstum. Leipziger Vorträge 1928. — [4] Cady, W.G.: Piezoelectricity. New York u. London: McGraw Hill 1946.

Prof. Dr.-Ing. Fritz Asselmeyer
und Dipl.-Phys. Walter Bienert,
Physikalisches Institut Weihenstephan
der Technischen Hochschule München

Die Verwendung von GaAs-Photoelementen zu Schwärzungsmessungen

Von Ernst Golling

Mit 7 Textabbildungen

(Eingegangen am 13. Februar 1957)

Einleitung

Die Genauigkeit spektrochemischer Analysenergebnisse hängt bei Anwendung quantitativer leitprobenfreier Verfahren — da Vergleichsspektren fehlen — weitgehend von der Zuverlässigkeit der photometrischen Auswertung der Spektrallinien ab. Man verwendet meist visuell einstellbare Photometer und bestimmt das Verhältnis von durchgelassener Intensität an einer unbelichteten Stelle zu der einer geschwärzten Stelle. Zur Messung der Lichtintensität werden in vielen handelsüblichen Photometern Selen-Photoelemente benutzt, deren Empfindlichkeitsverteilung etwa mit der Augenempfindlichkeit übereinstimmt und damit in einem Wellenlängenbereich liegt,

für den die Abbildung der Mikroskopobjektive normalerweise korrigiert ist. Bei visueller Scharfeinstellung der Spektrallinie ist also gleichzeitig der zur Intensitätsmessung verwendete Spektralbereich scharf abgebildet.

Das von uns bisher benutzte handelsübliche Photometer enthielt zur Messung der Lichtintensität ein Selen-Photoelement und ein schnellschwingendes Galvanometer. Dabei ist der vom Photoelement abgegebene Strom der auffallenden Lichtintensität proportional, wenn der Widerstand im Außenkreis klein gegen den Innenwiderstand der Zelle ist. Als Beleuchtungslampe diente eine 12 V 50 W Wolframlampe. Die

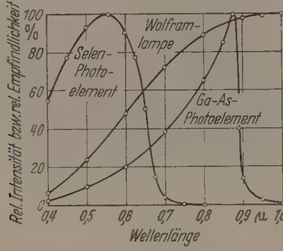


Abb. 1. Relative Intensität einer Wolframlampe von 2700° C Farbtemperatur bzw. relative Empfindlichkeit eines Selen- und GaAs-Photoelementes als Funktion der Wellenlänge

relativ hohe Empfindlichkeit und der einfache Aufbau der Meßanordnung haben dazu geführt, daß sie sich auch gegenüber Photozellen mit Verstärkern bzw. Sekundärelektronenvervielfachern behaupten konnte, obwohl gelegentlich Ermüdungs- und Trägheitserscheinungen der dabei verwendeten Photoelemente störend wirken.

In der vorliegenden Arbeit wird über die Prüfung von GaAs-Photoelementen [1] auf ihre Verwendbarkeit zur objektiven Schwärzungsmessung berichtet. Die benutzten p-n-Sperrschicht-Photoelemente sind im Zusammenhang mit der Untersuchung der halbleitenden $A^{III}B^{V}$-Verbindungen [2] entwickelt worden. Wie ihr Verhalten bei Bestrahlung mit Röntgen-

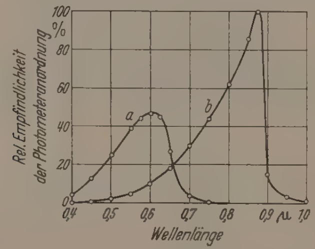


Abb. 2. Relative spektrale Empfindlichkeit von zwei verschiedenen Photometeranordnungen. *a* Selen-Photoelement/Wolframlampe; *b* GaAs-Photoelement/Wolframlampe

strahlen [3] gezeigt hat, ist eine sehr gute zeitliche Konstanz und eine praktisch trägheitslose Einstellung auf den Endausschlag zu erwarten.

Voraussetzung für die Verwendung von GaAs-Photoelementen

Der Meßvorgang in derartigen Photometern läßt sich kurz folgendermaßen skizzieren: ein von einer Wolframlampe beleuchteter Spalt (Vorspalt) wird über ein Mikroskopobjektiv auf eine Spektrallinie verkleinert abgebildet. Spektrallinie und Spaltbild werden von einem zweiten Mikroskopobjektiv auf einen Spalt unmittelbar vor der Photozelle (Photometerspalt) etwa 20 bis 30fach vergrößert abgebildet. Die Breite dieses Photometerspaltes soll etwa $^1/_3$ bis $^1/_{10}$ der zu photometrierenden Linie betragen.

Für die optischen Eigenschaften eines Photometers sind neben der Güte der Objektive und der einwandfreien Führung der Photoplatten die spektrale Lage der Emission der Beleuchtungslampe und der Empfänger sehr entscheidend. In der Abb. 1 sind die Kurven der relativen spektralen Empfindlichkeit von Selen- [4] und GaAs-Photoelementen und die Verteilung der relativen Intensität einer Wolframlampe von 2700° C Farbtemperatur [5] aufgeführt. Die relative Empfindlichkeit des Selenelementes wurde durch eine Messung bei 5500 Å an die des GaAs-Elementes angeschlossen. Unter Berücksichtigung der Herstellungstoleranzen ergibt sich für die beiden Empfindlichkeitsmaxima ein Verhältnis von etwa 1:1.

An Hand der Kurven erkennt man ferner, daß die von der Wolframlampe emittierte Intensität mit der Wellenlänge stark ansteigt und ein rot empfindlicher Empfänger, wie das GaAs-Photoelement, eine größere Strahlungsdichte vorfindet als ein Selen-Element. Da das Maximum der Wolframlampe etwa bei 1 μ liegt, stellt das GaAs-Photoelement praktisch den optimalen Empfänger dar, wenn die Abbildungseigenschaften der Mikroskopobjektive erhalten bleiben.

Die relative spektrale Empfindlichkeitsverteilung des Photometers erhält man aus den Kurven der Abb. 1 durch Multiplikation der spektralen Empfindlichkeit des Photoelementes mit der relativen Emission der Lampe. Den Verlauf für die Anordnung Selen-Photoelement und Wolframlampe, bzw. GaAs-Photoelement und Wolframlampe, zeigt die Abb. 2. Die maximale Empfindlichkeit des GaAs-Elementes wurde dabei gleich 100 gesetzt. Aus dem Verhältnis der von den Kurven eingeschlossenen Flächen ergibt sich beim GaAs-Photoelement gegenüber einem Selen-Element eine Steigerung um den Faktor 3,01. Die spektrale Lage dieser Kurven läßt sich am besten durch die Wellenlänge λ_s des Empfindlichkeitsschwerpunktes entsprechend folgender Definition charakterisieren:

$$\lambda_s = \frac{\sum \lambda_i \cdot \varepsilon_i}{\sum \varepsilon_i}.$$

(λ_s = Wellenlänge des Schwerpunktes; ε_i = relative Empfindlichkeit bei der Wellenlänge λ_i).

Die Kombination Selen-Photoelement/Wolframlampe ergibt für die Lage des Schwerpunktes 5700 Å, die Kombination GaAs-Photoelement/Wolframlampe 8000 Å. Befinden sich im Strahlengang des Photometers Filter, die nicht neutral-grau sind, oder ist der Verlauf der Durchlässigkeit der Ag-Schicht der Photoplatte bei verschiedenen Schwärzungen nicht derselbe, so können Verschiebungen dieses Schwerpunktes auftreten, die zu falschen Schwärzungskurven und damit zu falschen Intensitätsmessungen führen. Vor der Verwendung eines GaAs-Elementes sind deshalb folgende Voraussetzungen zu klären:

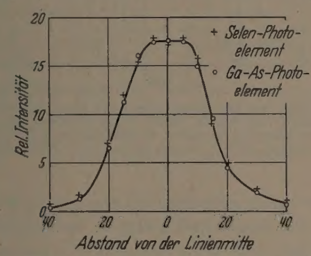
1. Sind die Abbildungseigenschaften der Mikroskopobjektive bis zu 9000 Å noch erhalten?

2. Besitzen die Ag-Schichten der Photoplatten zwischen 6000 und 9000 Å eine von der Wellenlänge unabhängige Durchlässigkeit?

3. Sind die zur Einstellung des Vollausschlages und ır Intensitätsschwächung eingebauten Filter bis)00 Å neutral-grau?

1. Scharfeinstellung im Bereich von 7000 bis 9000 Å

Die verwendeten Mikroskopobjektive (Achromate) nd normalerweise für den Bereich von 4000 bis 500 Å korrigiert. Da sich aber der Brechungsindex on Gläsern oberhalb 6500 Å nur noch wenig ändert nd bei der kurzen Brennweite der Objektive Brenn-eitenänderungen nur sehr gering sein können, war zu :warten, daß die visuell durchgeführte Scharfein-ellung auch noch im fernen Rot und nahen Ultrarot :halten bleibt. Zur Prüfung wurde eine Eisenlinie unächst auf den Photometerspalt eingestellt, dann ie Linie seitlich vom Spalt weggeschoben und die charfeinstellung etwas dejustiert. Bringt man nun wei Rotfilter (Schottfilter RG8 und RG9) unmittel-



bb. 3. Linienprofil einer Fe-Linie mit verschiedenen Photoelementen estimmt. (Die zur Aufnahme des Fe-Spektrums benutzte Spektrographen-Spaltbreite betrug 50 µ)

ar vor den Vorspalt des Photometers, so ändert sich er von der GaAs-Photozelle gelieferte Strom nur un-vesentlich, da im ausgefilterten Wellenlängenbereich ie Maximalempfindlichkeit der Zelle liegt. Das ichtbare Licht wird jedoch von beiden Filtern voll-ommen absorbiert. Stellt man nun durch Seitwärts-erschieben der Photoplatte den kleinsten Photometer-usschlag und durch Nachdrehen der Mikroskop-charfeinstellung den Ausschlag auf Maximum ein und immt die Rotfilter heraus, dann ergibt sich eine Photometereinstellung, die praktisch der visuellen Scharfeinstellung entspricht.

Eine weitere Prüfung der Abbildung wurde durch Ausmessen des Profils einer mit einem Gitterspektro-graphen aufgenommenen Fe-Linie vorgenommen. Das nit einem Selen- bzw. GaAs-Photoelement erhaltene Ergebnis ist in der Abb. 3 wiedergegeben. Die Halb-vertsbreite bei beiden Messungen beträgt $34 \pm 2\,\mu$.

Da für das Selen-Photoelement die Scharfeinstel-ung des zum Photometrieren benutzten Wellenlängen-ereiches erfüllt ist, ist die Übereinstimmung der mit len beiden Strahlungsempfängern erhaltenen Linien-rofile ein weiterer Beweis für die Brauchbarkeit der Abbildung bis zu etwa 9000 Å. Einer Einstellung des Photometers im visuellen Spektralbereich entspricht lamit auch eine befriedigende Scharfeinstellung zum Photometrieren im fernen Rot und nahen Ultrarot.

2. Durchlässigkeit von Photoplatten als Funktion der Wellenlänge

Bei der Messung der Linienprofile wurde voraus-gesetzt, daß die photographische Schicht eine neutral-graue Schwärzung aufweist und nicht durch eine chwärzungsabhängige Farbfilterwirkung den Emp-findlichkeitsschwerpunkt verschiebt. Der Verlauf der „Schwärzung" als Funktion der zum Photometrieren verwendeten Wellenlänge wurde mit dem Spektral-photometer von Zeiss, Typ M4 Q2 bestimmt.

Für eine mit Metol-Hydrochinon entwickelte Perutz-Spektralblau-Platte mit Schwärzungen zwi-schen $S = 0{,}4$ bis 2,8 ergibt sich der in der Abb. 4 dargestellte Verlauf. Der neutralgraue Charakter ist bei kleinen Schwärzungen der Photoplatte sehr gut, bei größeren Schwärzungen weniger gut erfüllt. Außer-dem wirkt sich die Wellenlängenabhängigkeit im Spektralbereich der maximalen Empfindlichkeit der Se-Zelle stärker als im Bereich der GaAs-Zelle aus und bedingt das frühere Umknicken der Schwärzungs-kurven bei der Messung mit Se-Photoelementen. Der Einfluß auf die Lage des Empfindlichkeitsschwer-punktes der Photometeran-ordnung ist aber praktisch zu vernachlässigen. Sowohl bei Schwärzungsmessungen als auch bei den eben er-wähnten Untersuchungen mit einem Spektralphoto-meter ist zu beachten, daß eine apparateabhän-gige Größe bestimmt wird. Die Lichtschwächung beim Durchgang durch die Photo-platte setzt sich aus Absorp-tion und Streuung zusam-men, und beide Größen sind von der Geometrie des Strahlenganges und der Anordnung des Empfängers abhängig.

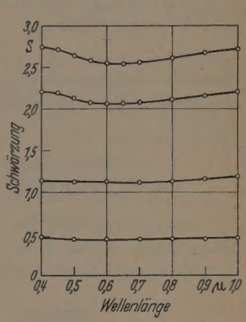


Abb. 4. „Schwärzung" als Funk-tion der Wellenlänge von vier ver-schieden stark belichteten Stellen einer Perutzplatte (Spektralblau)

3. Wirkung der im Photometer eingebauten Filter

Das benutzte Photometer besitzt zwischen Photo-meterspalt und Photoelement einen Graukeil zur Ein-stellung des Vollausschlages und vier zwischen 100 und 12,5% abgestufte Einstellungen zum Schwächen der Lichtintensität bei Verwendung eines breiten Photo-meterspaltes. Die Filter sind, wie unsere Unter-suchungen ergaben, bis 9000 Å nicht ganz neutralgrau. Um festzustellen, inwieweit dadurch ein Einfluß auf den Schwerpunkt der Photometerempfindlichkeit und damit auf die Neigung der Schwärzungskurven vor-liegt, wurde der γ-Wert für die verschiedenen Filter-einstellungen des Photometers bestimmt. Zu diesem Zweck wurde ein Fe-Spektrum mit einem rotierenden Stufensektor aufgenommen und daraus für einige Linien die Schwärzungskurven aufgestellt. Um ver-gleichbare Resultate zu erzielen, bleiben alle Photo-metereinstellungen während der Messung unverändert. Der durch die Filter veränderte Lichtstrom am GaAs-Photoelement ist durch eine entsprechende Änderung der Photometerspalthöhe kompensiert worden, so daß der Vollausschlag des Galvanometers bei allen Mes-sungen konstant blieb.

Die Tabelle 1 zeigt als Beispiel das Meßergebnis an den 7 Stufen einer mit einem rotierenden Sektor auf-genommenen Spektrallinie. Die Filtereinstellungen entsprechen den Aufschriften am Photometer und stimmen mit der Durchlässigkeit im ultraroten Spek-tralbereich nicht mehr ganz überein. Da es sich aber nur um eine Art Benennung der Filter handelt, ist dies in diesem Zusammenhang bedeutungslos.

Die für die vier Filtereinstellungen erhaltenen Resultate stimmen unter Berücksichtigung der Fehlergrenze sehr gut überein und weisen darauf hin, daß der

Tabelle 1. *Schwärzungen einer mit einem rotierenden Stufensektor abgeschwächten Fe-Linie bei verschiedenen Filtereinstellungen*

Stufen des rotierenden Sektors	Filtereinstellungen in %			
	100	50	25	12,5
1	2,10	2,18	2,13	2,18
2	1,63	1,60	1,63	1,63
3	1,195	1,205	1,205	1,200
4	0,820	0,820	0,824	0,824
5	0,526	0,522	0,524	0,521
6	0,311	0,313	0,308	0,308
7	0,180	0,181	0,182	0,184

Empfindlichkeitsschwerpunkt nicht merklich verschoben wird. Das gleiche gilt für den Graukeil.

Unterschiede zwischen Selen- und GaAs-Photoelementen

Auf Grund der im vorigen Abschnitt erhaltenen Ergebnisse kann man an Stelle eines Selen-Photoelements eine GaAs-Zelle in das Photometer einbauen.

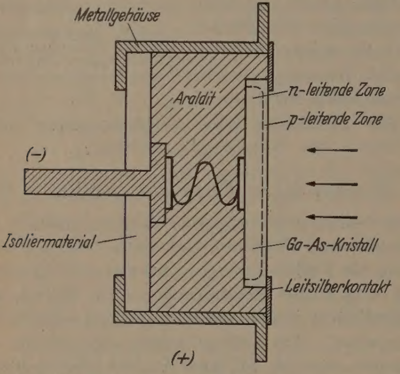


Abb. 5. Schematische Darstellung des Aufbaus einer GaAs-*p*-*n*-Sperrschichtzelle

Der Aufbau eines GaAs-*p*-*n*-Photoelementes ist in der Abb. 5 wiedergegeben. Der *p*-leitende Bereich ist durch Dotieren mit Zn entstanden. Bei einer Oberfläche von $\sim 0{,}4\ cm^2$ wurde ein Dunkelwiderstand des Photoelementes von $> 7 \cdot 10^6\ \Omega$ gemessen. Mit diesem Empfänger ergab sich bei konstant gehaltener Helligkeit der Photometerlampe ein 2,8mal größerer Photostrom als mit einem Selenelement. Unter Berücksichtigung, daß die ausgenutzte Fläche des Selenphotoelements etwas größer als $0{,}4\ cm^2$ ist, ergibt sich eine Steigerung der Empfindlichkeit, die ziemlich genau dem Anstieg der Emission der Wolframlampe zwischen 5700 und 8000 Å entspricht. Die höhere Empfindlichkeit beruht also in erster Linie auf der günstigeren Anpassung des Empfängers an die Emission der Wolframlampe.

Diese Tatsache läßt die Verwendung kleinerer Spaltbreiten bzw. Spalthöhen zu und trägt so zur Verminderung des Streulichteinflusses auf die Meßergebnisse bei. Außerdem wird die wahre Höhe des Linienplateaus bei quantitativen Arbeiten besser wiedergegeben und der Einfluß der Linienbreite herabgesetzt. Dies erlaubt z.B. die Anwendung kleinerer Spektrographenbreiten bei der quantitativen Spurenanalyse und erhöht dadurch die Nachweisempfindlichkeit.

Zur Prüfung der Ermüdungserscheinungen wurden beide Photoelemente nach einer 2 Std dauernden Belichtung verschieden lang verdunkelt. Die Verdunklungszeiten lagen zwischen 10 sec und 3 min, entsprechend der für eine Spektrallinie benötigten Einstellzeiten. In der Abb. 6 ist dargestellt, inwieweit sich im Anschluß an das Verdunkeln der Ausschlag von 900 Skalenteilen wieder einstellt. Bei dem benutzten Selenphotoelement kehrt nach 10 sec Verdunkelung der Ausschlag nach 100 sec auf den alten Wert zurück. Im Anschluß an die 3 min dauerende Verdunklung liegt er selbst nach 100 sec noch ganz erheblich über dem alten Wert. Das GaAs-Photoelement verhält sich

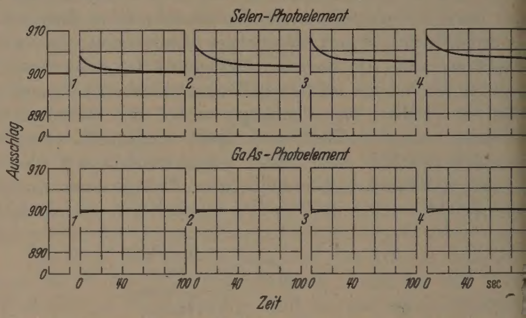


Abb. 6. Neueinstellung des Photometers auf einen konstanten Ausschlag von 900 Skt. nach verschieden langer Unterbrechung des auf das Selen bzw. GaAs-Photoelement fallenden Lichtstromes. *1* Unterbrechung 10″; *2* Unterbrechung 30″; *3* Unterbrechung 1′; *4* Unterbrechung 3′

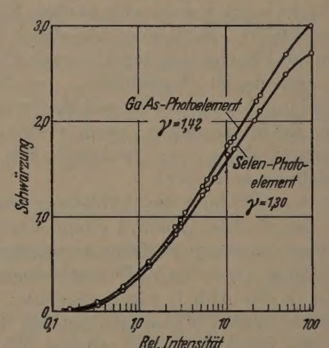


Abb. 7. Schwärzungskurven bei 3025 Å (Perutzplatte „Spektralblau“)

bei der gleichen Behandlung wesentlich günstiger. Der vor dem Verdunkeln vorhandene Ausschlag ist nach spätestens 20 sec in allen vier Fällen wieder vorhanden. Die kleine Differenz von $^1/_4$ bis 1 Skalenteil gleich nach dem Wiederbelichten läßt sich eindeutig auf die elastischen Nachwirkungen des Galvanometers zurückführen. Die eventuell vorhandenen Ermüdungserscheinungen des GaAs-Photoelementes liegen demnach noch innerhalb der Ablesegenauigkeit von 0,2 Skalenteilen.

Der Verlauf der Schwärzungskurve für die beiden Empfänger ist in der Abb. 7 wiedergegeben. Die Schwärzungskurve ist, wie man auch aus den Kurven

r Abb. 4 entnehmen kann, bei den GaAs-Zellen eiler. Eine größere Steilheit der Schwärzungskurve dingt eine genauere Intensitätsbestimmung und richt auf keinen Fall gegen eine Verwendung dieser ellen für Schwärzungsmessungen. Außerdem ist die ennlinie bei GaAs-Elementen bis zu höheren Schwärungswerten linear, was sich vor allem bei quantitativen Analysen auf den mit einer Spektrallinie erfaßbaren Konzentrationsbereich günstig auswirken kann.

Ein weiterer Vorteil der GaAs-Zelle gegenüber er Selensperrschichtzelle besteht in der kleineren lativen Halbwertsbreite der photometrischen Empfindlichkeitskurve. Die Annäherung an die ideale Messung mit monochromatischem Licht, ähnlich wie in er Kolorimetrie ist damit besser verwirklicht. Der is ins Sichtbare laufende Ast könnte noch durch ein otfilter zwischen Photometerspalt und Photoelement ine nennenswerte Einbuße an Empfindlichkeit weggenommen werden.

GaAs-Zellen werden von uns seit etwa 6 Monaten enutzt und haben sich sehr gut bewährt. Ähnliche esultate müßten sich für Si-Photoelemente ergeben, a deren Empfindlichkeitsmaximum ebenfalls bei twa 9000 Å liegt [4].

Zusammenfassung

Bei der Durchführung von objektiven Schwärzungsmessungen insbesondere für die Zwecke der Spektralanalyse müssen an die benutzten Strahlungsempfänger sehr hohe Anforderungen in bezug auf Konstanz und Empfindlichkeit gestellt werden. Die beschriebenen Untersuchungen zeigen, daß GaAs-Photoelemente diesen Anforderungen genügen und in der Empfindlichkeit den bisher üblichen Photoelementen überlegen sind. Irgendwelche Störungen durch Ermüdungserscheinungen sind bei GaAs-Photozellen nicht nachweisbar.

Herrn Dr. R. GREMMELMAIER danke ich für die Überlassung des GaAs-Photoelementes und der zugehörigen Empfindlichkeitsverteilung als Funktion der Wellenlänge.

Literatur: [1] GREMMELMAIER, R.: Z. Naturforsch. **10a**, 501 (1955). — [2] WELKER, H.: Z. Naturforsch. **7a**, 744 (1952). — [3] PFISTER, H.: Z. Naturforsch. **11a**, 434 (1956). — [4] SCHWEICKERT, H.: ETZ 7, 377 (1955). — [5] SEWIG, R.: Handbuch der Lichttechnik, S. 212. Berlin: Springer 1938.

Dr. ERNST GOLLING,
Forschungslaboratorium
der Siemens-Schuckertwerke AG.,
Erlangen

Bemerkung zu der Arbeit:

Ein Lichtmodulator zum Betrieb von Ultrarotempfangsgeräten von R. KESSLER*

Von HELMUTH FRENK

(Eingegangen am 10. Dezember 1956)

Die vorliegende Arbeit kommt auf Grund qualitativer Anschauungen über die phasenempfindliche Gleichrichtung zu einer übertriebenen Forderung an die Oberwellenfreiheit der Demodulation. Diese Forderung kann zudem mit den benutzten Mitteln gar nicht erfüllt werden. Im einzelnen erscheint mir die in den folgenden Sätzen dargestellte Ansicht unrichtig:

S. 406, Z. 4: . . . „an dessen Oberwellenfreiheit . . . erhebliche Anforderungen gestellt werden müssen".

Weiter der ganze Abschnitt vor der Zusammenfassung mit dem Schlußsatz: „Im vorliegenden Fall ergibt sich zwanglos eine oberwellenfreie Steuerung."

Der schwerwiegendste Fehler, aus dem sich die anderen ergeben, liegt in diesem letzten Satz. Ein Ringmodulator, an dessen Ausgang eine Spannung *irgendeiner* Frequenz mit der Schaltspannung moduliert erscheinen soll, muß stets so betrieben werden, daß die Schaltspannung groß gegen die Signalspannung ist. Nur dann ist am Meßinstrument ein dem Signal proportionaler Ausschlag zu erwarten. (Wird im Extremfall die Meßspannung gleich oder größer als die Schaltspannung, so zeigt das Instrument nur noch die Amplitude der Schaltspannung an.) Diese Bedingung ist offenbar eingehalten, was auch aus dem Zahlenwert von 4 V für die Schaltspannung zu schließen ist. Unter dieser Bedingung arbeitet aber ein Ringmodulator nicht anders als ein mechanischer Kontaktgleichrichter; d.h. er moduliert die Meßspannung mit einer *Rechteck*spannung (genauer *Trapez*-Spannung), auch wenn die Schaltspannung noch so sinusförmig ist.

Das geht ohne weiteres aus der Funktion des Modulators als Brückenschaltung hervor: sobald nach dem Nulldurchgang die Schaltspannung größer wird als die Meßspannung, wirkt ein weiteres Anwachsen sich nicht mehr im Ausgang aus. Das ist am einfachsten zu sehen, wenn man als Meßspannung eine Gleichspannung auf den Ringmodulator gibt. Ein Oszillograph am Ausgang zeigt die Trapezform der Spannung.

Genau so wird eine genügend kleine Meß-Wechselspannung auch nicht mit einer Sinus-, sondern etwa mit einer Rechteckspannung moduliert. Das hat, wie richtig bemerkt wurde, auf die Wiedergabe des Signals gleicher Frequenz keinerlei Einfluß, sondern wirkt sich erst aus, wenn Fremdspannungen in den Frequenzen der Oberwellen erscheinen. Das ist also beim sinusgespeisten Ringmodulator genau so der Fall wie beim Kontaktgleichrichter.

Die Fourier-Reihe der Rechteckspannung enthält die 3., 5., 7. . . . Oberwelle mit $^1/_3$, $^1/_5$, $^1/_7$ usw. der Amplitude. Nur von diesen Frequenzen, nicht aber von „allen Oberwellen" werden jene Bruchteile als Gleichspannungen erscheinen. Mit „quadratischen Kennlinien" aber hat das gar nichts zu tun. Betrachtet man schließlich die Wiedergabe des Rauschens, so werden aus der Umgebung der Grundwelle und der ungeraden Oberwellen Rauschanteile als Gleichspannungen erscheinen, und zwar statistisch schwankend positiv oder negativ. Ihre Amplituden 1, $^1/_3$, $^1/_5$ . . .

* Z. angew. Phys. 8, 405 (1956).

müssen also geometrisch addiert werden. Damit ergibt ihr Einsetzen in die Nyquistsche Gleichung eine Bandbreite welche etwa $^1/_4$ größer ist (genau $\pi^2/8$), als wenn nur die Grundwelle gleichgerichtet würde: im Beispiel also eine Steigerung von 0,05 Hz auf 0,06 Hz. Die Rauschspannung wird also nur etwa $^1/_{10}$ größer sein.

Die zugrunde gelegte Behauptung, daß durch die Rechteckmodulation die Bandbreite „beträchtlich" vergrößert wurde, trifft also nicht zu. Aber selbs die geringe berechnete Bandbreitenvergrößerung wir durch die benutzte streng sinusförmige Schaltspan nung gar nicht vermieden. An die Oberwellenfreihe der Schaltspannung werden also auch nicht „erheb liche Anforderungen" gestellt.

Dipl.-Phys. Helmuth Frenk,
Wetzlar, Leitzwerke

Erwiderung zu der vorstehenden Bemerkung

(Eingegangen am 4. Januar 1957)

Zu dem von Frenk [2] zitierten Abschnitt seien die Argumente ausführlicher nachgetragen:

1. Die in [1] gegebene Diskussion betrifft nur den quadratischen Teil der Kennlinie. Für diesen Fall ist sie unangefochten. Ebenso unangefochten ist, daß ein weiter ausgesteuerter Ringmodulator immer mehr die Wirkungsweise eines Kontaktgleichrichters annimmt.

2. Damit die Vorteile der ersteren Betriebsweise zum Vorschein kommen, arbeiten die Gleichrichter im quadratischen Teil der Kennlinie. Die Ausgangsspannung des Steuergenerators liegt nur zu einem kleinen, regelbaren Teil am Modulator. Die angegebene Zahl soll den Arbeitsbereich des Generators kennzeichnen.

3. Der Empfindlichkeitsverlust durch die Beschränkung der Steuerspannung auf den quadratischen Teil beträgt etwa 50%. Davon wird das Rauschen in gleichem Maße betroffen.

4. Der Gewinn an *thermischer* Rauschfreiheit macht dagegen etwa 10% aus. Darüber hinaus entgeht man aber allen anderen Störungen in der Nähe der entsprechenden Oberwellen, die nicht dem thermischen Rauschen entsprechen (Netzstörungen, mangelhafte HF- und NF-Abschirmung in Laboratorien, Störunge vom „Shopper"-Mechanismus).

5. Durch Reihenschaltung mehrerer Dioden läß sich die Empfindlichkeit wieder anheben. Gewöhn liche Verstärkung erscheint jedoch einfacher.

6. Ist das Verhältnis von Steuer- zu Signalspan nung groß, bleibt die Linearität der Anzeige hinrei chend gewahrt.

7. Der Kontaktgleichrichter hat z.B. wegen seine Temperaturkonstanz, seines leichten Abgleichs un seiner Überlastungssicherheit seine Vorzüge. Mein Erfahrung über die Konstanz der Dioden im Ring modulator, die von seiten der erzeugenden Firme durch Vorbehandlung und Auslese erreicht wird, läß die Verwendung der Dioden im Laboratorium unbe denklich und im angegebenen Rahmen der selbst gebauten Apparatur angemessener erscheinen.

Literatur: [1] Kessler, R.: Z. angew. Phys. 8, 40 (1956). — [2] Frenk, H.: Z. angew. Physik 9, 259 (1957)

Dr. Rudolf Kessler
II. Physikalisches Institut der Universität Köln

Berichtigung zu der Arbeit:*

Über die beim Glockenläuten auf den Turm wirkenden horizontalen Wechselkräfte**

(Eingegangen am 21. Februar 1957)

Durch die Herren Dipl.-Ing. Dr. H. Bednarczyk und Dr. K. Desoyer vom I. Institut für Mechanik der Technischen Hochschule Wien wurde ich freundlicherweise auf ein Versehen aufmerksam gemacht, das mir leider beim Übergang vom mathematischen zum physikalischen Pendel unterlief. Bei diesem besteht auch noch eine tangentiale Zwangskraft, die einen Beitrag zur horizontalen Lagerbeanspruchung liefert. Die Ableitung läßt sich in diesem Falle einfacher in rechtwinkligen Koordinaten durchführen, beide Rechnungen ergeben die Formel:

$$K_{\text{hor}} = M g \frac{M s^2}{T} (3 \cos\varphi - 2 \cos\varphi_0) \sin\varphi,$$

die an die Stelle von Gl. (6a) tritt und sich von der des mathematischen Pendels nur durch den Faktor $M s^2/T$ unterscheidet.

Daraus folgt, daß auch im Falle des physikalische Pendels die in den Abb. 2, 4 und 5 für das mathemati sche Pendel ausgezogen dargestellten Kurven gelte mit dem Unterschied, daß die Maßeinheit an de Ordinatenachse jetzt $Mg\, Ms^2/T$ an Stelle von m lauten muß. Den größten Wert von K_{hor} erhält ma nach wie vor für $Ms^2 = T_S$ (Grenzfall des mathemati schen Pendels), dagegen ist der in Gl. (6b) angegeben untere Grenzwert unrichtig. Durch Verminderung vo s läßt sich K_{hor} vielmehr beliebig verkleinern. Von Standpunkt der angewandten Akustik aus gesehen von dem aus vorstehende Arbeit entstand, besteht di Möglichkeit, von der Verkleinerung von K_{hor} Gebrauc zu machen, jedoch nur in beschränktem Umfange, d auch die Schwingungsdauer von s abhängt und dies wegen der musikalischen Anforderungen an das Ge läute innerhalb verhältnismäßig enger Grenzen liege muß.

Dr. W. Kallenbach
Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig

* Amtliche Mitteilung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt.

** Z. angew. Phys. 8, 508 (1956).